

Messung der Debye-Waller-Koeffizienten
von Diamant und Silizium
mit einem Neutronen-Diffraktometer

Manfred Müllner

1966

1967

Messung der Debye-Waller-Koeffizienten
von Diamant und Silizium
mit einem Neutronen-Diffraktometer

Inaugural - Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaftlichen Fakultät der
Johann-Wolfgang-Goethe-Universität
zu Frankfurt am Main

vorgelegt von
M a n f r e d M ü l l n e r

1966



Gedruckt mit Genehmigung der Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Universität Frankfurt am Main

Dekan: Prof. Dr. J. Stauff

1. Referent: Prof. Dr. E. Schopper

2. Referent: Prof. Dr. H. Bilz

Tag der mündlichen Prüfung: 10. 1. 1967

Tag der Promotion: 10. 1. 1967

I n h a l t

Zusammenfassung	1
Allgemeine Einleitung	2
I. Einkristall-Spektrometer	4
Einleitung	4
Reaktorkollimator	3
Konstruktion des 2-Kreis-Gerätes	9
Goniometer	12
Detektor	13
Detektorabschirmung	14
Strahlenfänger	15
Aufbau und Justierung	16
Detektorelektronik	18
Meßzyklus	20
II. Messungen mit dem Einkristall-Spektrometer	22
Neutronenfluß im Strahlkanal L 6	22
Mosaikverteilung der Monochromatorkristalle	25
Auflösungsvermögen des Spektrometers	30
Zählratenspektrum	37

III. Diffraktometer	40
Einleitung	40
Kollimatoren	45
Monochromator	50
Monochromatorabschirmung	51
Detektoren	53
Detektorabschirmung	54
Aufbau und Justierung des Diffraktometers	54
Zusatzapparaturen	55
IV. Voruntersuchungen mit dem Diffraktometer	58
Wellenlänge des monochromatischen Strahls	58
Bandbreite des monochromatischen Strahls	62
Höhere Ordnungen	63
Auflösungsvermögen des Diffraktometers	67
V. Messung der Debye-Waller-Koeffizienten von Diamant und Silizium	70
Debye-Waller-Koeffizienten bei konstanter Temperatur	70
Temperaturabhängigkeit der Debye-Waller- Koeffizienten	77
Debye-Temperaturen	83
Diskussion der Ergebnisse	88
Literatur	90

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden Konstruktion und Aufbau eines Einkristall-Spektrometers und eines Diffraktometers für Neutronen beschrieben.

Mit dem Einkristall-Spektrometer wurden Blei- und Kupfermonochromatorkristalle für das Diffraktometer untersucht und das Zählratenspektrum der Neutronen des Reaktors mit einem Pb-Einkristall gemessen.

Die Halbwertsbreite einer "rocking curve" und das Auflösungsvermögen eines Einkristall-Spektrometers mit verschiedenen Divergenzen des Reaktor- und des Detektorkollimators werden abgeleitet.

Mit dem Diffraktometer wurden die Pulver-Reflexe (111) bis (531) von Diamant und (111) bis (511) von Silizium bei Zimmertemperatur gemessen und aus den Intensitäten dieser Reflexe die Debye-Waller-Koeffizienten W_0 bestimmt. Die Temperaturabhängigkeit der Debye-Waller-Koeffizienten wurde mit diesen Bezugswerten W_0 aus den Intensitätsänderungen der Reflexe (531) von Diamant und (422) von Silizium im Temperaturbereich $T = 80^\circ \text{ K}$ bis etwa 800° K ermittelt.

Die Ergebnisse stimmen mit den von Jex /134/ aus Frequenzspektren berechneten Debye-Waller-Koeffizienten innerhalb der Fehlergrenzen gut überein. Es wurden die Frequenzspektren von Dolling und Cowley /135/ verwendet, die nach einem Schalenmodell berechnet und mit thermodynamischen und optischen Daten der Kristalle verglichen wurden.

Aus den gemessenen und berechneten Debye-Waller-Koeffizienten W_T für Diamant und Silizium wurden über ein Debye-Frequenzspektrum charakteristische Debye-Temperaturen $\Theta^W(T)$ abgeleitet. Es wird eine graphische Methode zur Ermittlung der Debye-Temperaturen angegeben.

Allgemeine Einleitung

Der Debye-Waller-Temperaturfaktor ist bei verschiedenen Untersuchungen wie z.B. der Strukturanalyse, der Elektronen- und Spindichtebestimmung, Mößbauer-Experimenten usw. von Bedeutung; er kann aus Messungen der spezifischen Wärme, der elastischen Konstanten, des elektrischen Widerstandes und Beugungsexperimenten mit Röntgenstrahlen oder Neutronen ermittelt werden. Unterschiede der Debye-Waller-Faktoren zwischen Röntgenstrahl- und Neutronenmessungen sollten nach der Theorie /114,115/ nicht auftreten, obwohl die erste Methode die Schwingungen der Elektronenhülle, die letztere Kernschwingungen beschreibt.

Die großen Abweichungen der Debye-Waller-Faktoren von Diamant, die von Göttlicher /116/ mit Röntgenstrahlen gemessen wurden, gegenüber den aus kalorimetrischen Daten berechneten Faktoren waren der Anlaß zu dieser Arbeit, die Debye-Waller-Faktoren mit Neutronen zu messen.

Diese Untersuchungen mit Neutronen an Diamant haben im Vergleich zu Röntgenstrahlen folgende Vorteile:

die Absorption ist vernachlässigbar, eine Korrektur dafür entfällt;

die kohärente Streuamplitude ist unabhängig vom Reflexionswinkel;

außerdem

ist die kohärente Streuamplitude groß
($b = 0,66 \cdot 10^{-12}$ cm);

tritt praktisch keine Isotopie- und Spin-Inkohärenz auf.

Die Messungen wurden zur Kontrolle und zum Vergleich auf Silizium ausgedehnt, von dem ebenfalls Röntgenmeßdaten des Debye-Waller-Faktors vorliegen /116, 117/.

Zunächst wurde ein vollautomatisches 2-Kreis-Gerät (λ -Kreis für Kristallprobe, 2λ -Kreis für Detektor) als Einkristall-Spektrometer aufgebaut und Pb- und Cu-Monochromatorkristalle untersucht.

Im Anschluß an diese Messungen wurde dieses 2-Kreis-Gerät mit einer Monochromator-Einrichtung als Pulver-Diffraktometer für die Messungen des Debye-Waller-Faktors von Diamant und Silizium umgebaut.

I. Einkristall-Spektrometer

Einleitung

Das Einkristall-Spektrometer setzt sich aus einem vollautomatischen 2-Kreis-Gerät und aus Versuchseinrichtungen (Kollimatoren, Goniometer, Detektor, Meß- und Steuer-Elektronik, Strahlenfänger) zusammen.

Die Abb. 1-1,2 zeigen einen Horizontal- und einen Vertikal-Schnitt und Abb. 1-3 eine schematische Skizze mit den geometrischen Daten des Versuchsaufbaues.

Das Einkristall-Spektrometer wurde nur für Untersuchungen an Monochromatorkristallen benötigt. Daher waren der Versuchsaufbau und Einrichtungen, die nicht mehr für das Diffraktometer verwendet werden konnten, einfach gehalten.

Beschreibungen von Einkristall-Spektrometern sind in den Veröffentlichungen /1 - 20/ erschienen.

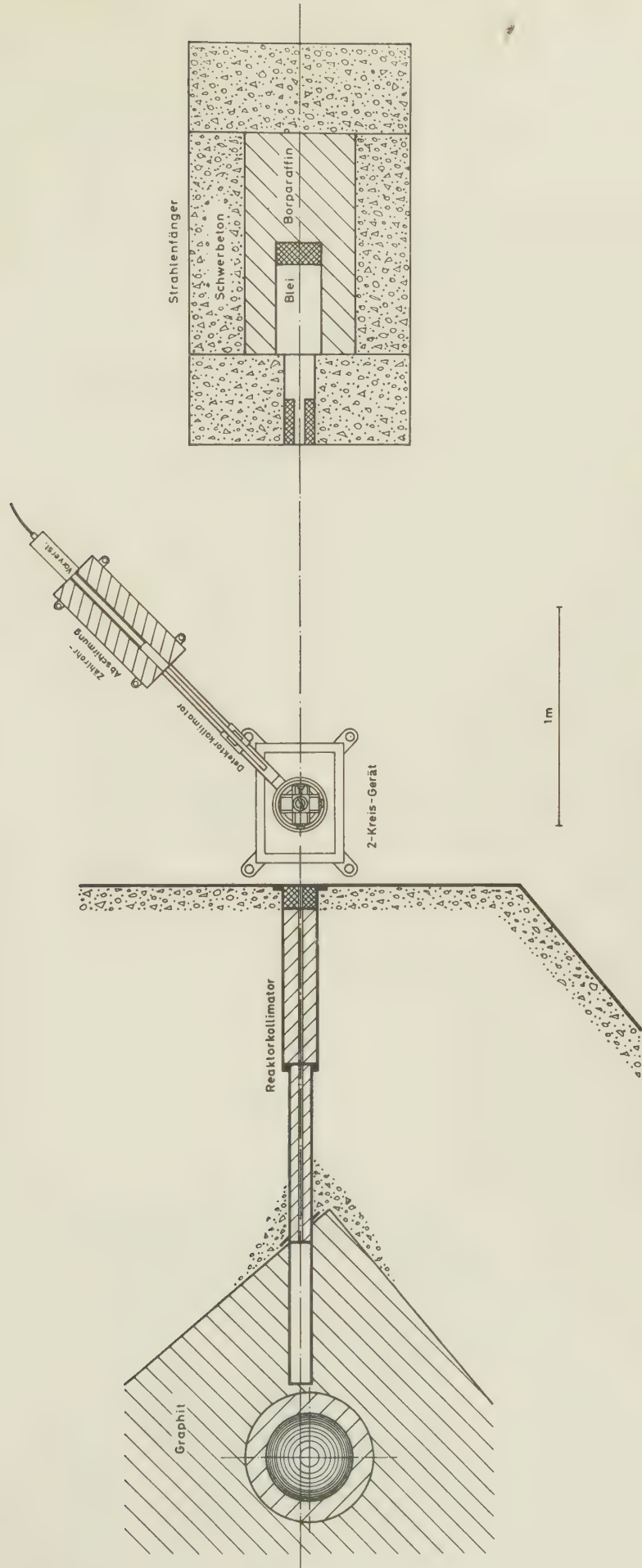


Abb. 1-1. Horizontalschnitt durch das Einkristall-Spektrometer

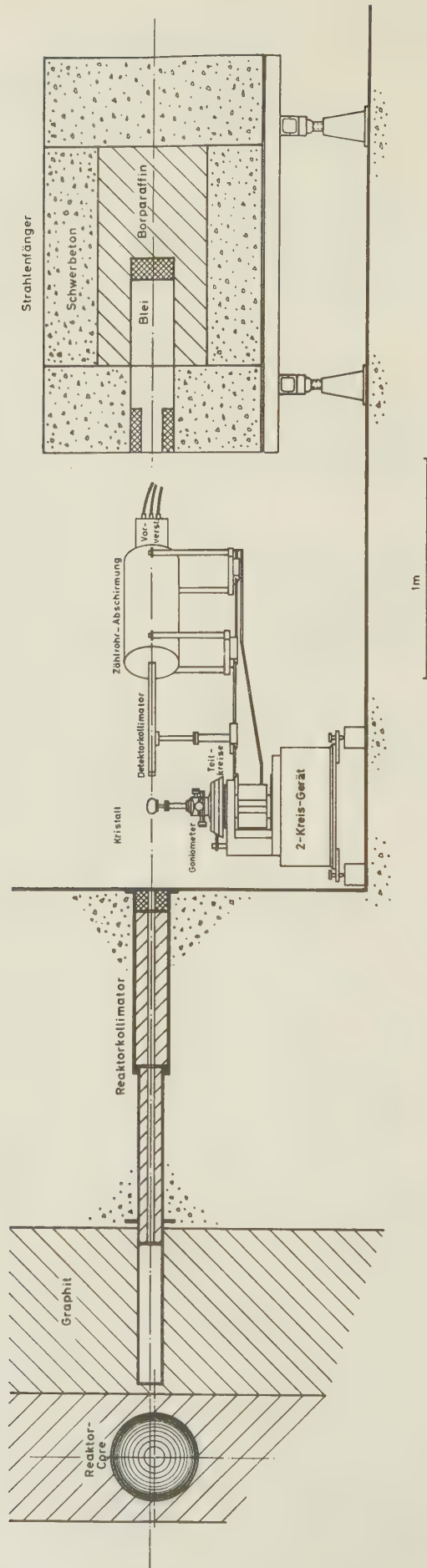


Abb. 1-2. Vertikalschnitt durch das Einkristall-Spektrometer

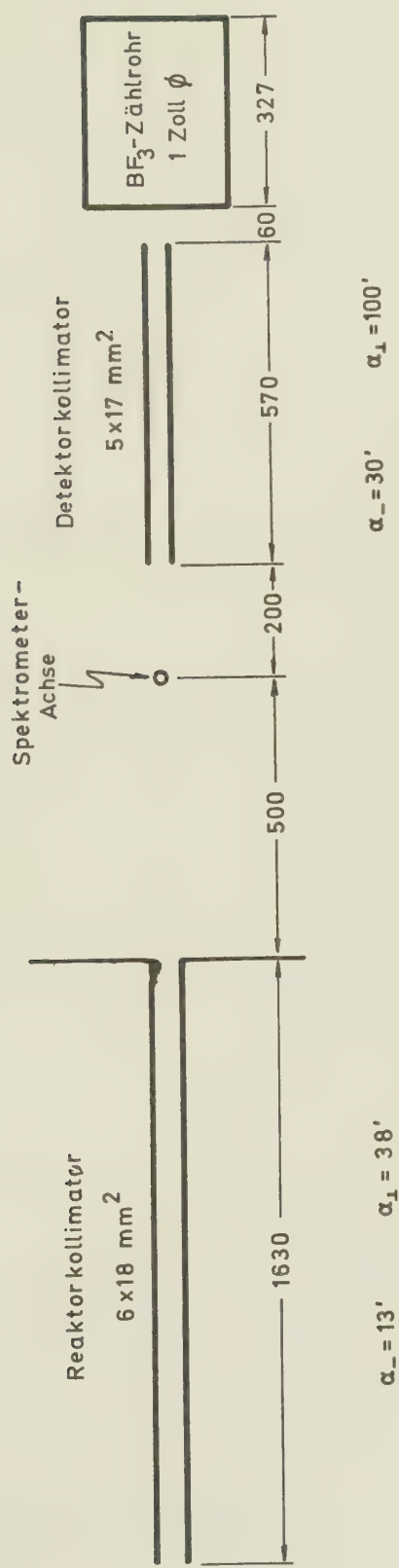


Abb. 1-3. Geometrische Daten des Einkristall-Spektrometers, Maße in mm

Reaktorkollimator

Die Dimensionierung des Reaktorkollimators für ein Einkristall-spektrometer wird durch die erforderliche Energieauflösung be-stimmt. Für die meisten Messungen wie z.B. die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten oder von Energiespektren der aus dem Reaktor austretenden Neutronen sind horizontale Winkeldiver-genzen des Reaktorkollimators von etwa $10'$ ausreichend. Für die Untersuchungen von Monochromatorkristallen mit dem in dieser Arbeit beschriebenen Einachsen-Spektrometer wurde eine Divergenz des Reaktorkollimators von $13'$ gewählt.

Da der Kollimator nur für wenige Messungen zur Bestimmung der Eigenschaften verschiedener Monochromatorkristalle verwendet werden sollte, wurde dieser und der Abschirmmantel für den Reaktorkanal aus einfachen Teilen und ohne großen mechanischen Aufwand gebaut.

Als Kollimatorkanal wurde ein gezogenes Vierkantrohr aus Messing mit den Innenabmessungen $6 \times 18 \text{ mm}^2$ und einer Länge von 168 cm verwendet mit der horizontalen Winkeldivergenz von $\alpha_{\text{hor.}} = 13'$ und der vertikalen von $\alpha_{\text{vert.}} = 38'$. Die Auffüllung des Strahl-kanals besteht aus zwei Holz- und einem Bleistopfen mit dazwischen gelegten, $1/2 \text{ mm}$ dicken Cadmium-Scheiben. Die Abmessungen dieser Bauteile gehen aus der Abb. 1-4 hervor. Die Einzelteile der Kollimator-Abschirmung sind auf das Messingrohr aufgeschoben.

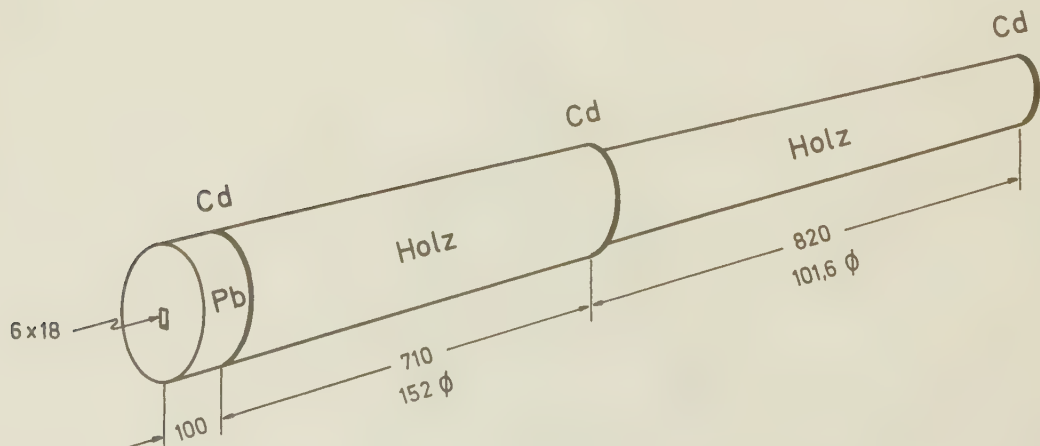


Abb. 1-4. Reaktorkollimator für das Einkristall-Spektrometer,
 $\alpha_{\text{hor.}} = 13'$ $\alpha_{\text{vert.}} = 38'$, Maße in mm

Konstruktion des 2-Kreis-Gerätes

Mit einem Einkristall-Spektrometer variiert und mißt man die Winkel zwischen dem einfallenden Neutronenstrahl, den reflektierenden Netzebenen des Monochromatorkristalles und dem Detektor. Dabei müssen bei kohärenter, elastischer Streuung für alle Winkel des einfallenden Neutronenstrahles die Bragg'sche Interferenzbeziehung

$$n \lambda = 2 d \sin \vartheta \quad (1-1)$$

λ = Wellenlänge der Neutronen

n = Ordnung der Reflexion

d = Netzebenenabstand

ϑ = Reflexionswinkel

und für den Monochromatorkristall und den Detektor die 1:2-Winkelbedingung erfüllt sein (Abb. 1-5).

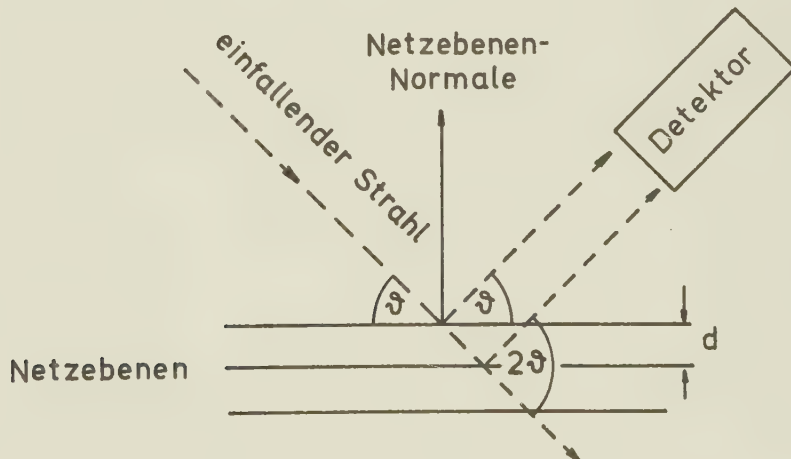


Abb. 1-5. Geometrische Beziehung für die Beugung

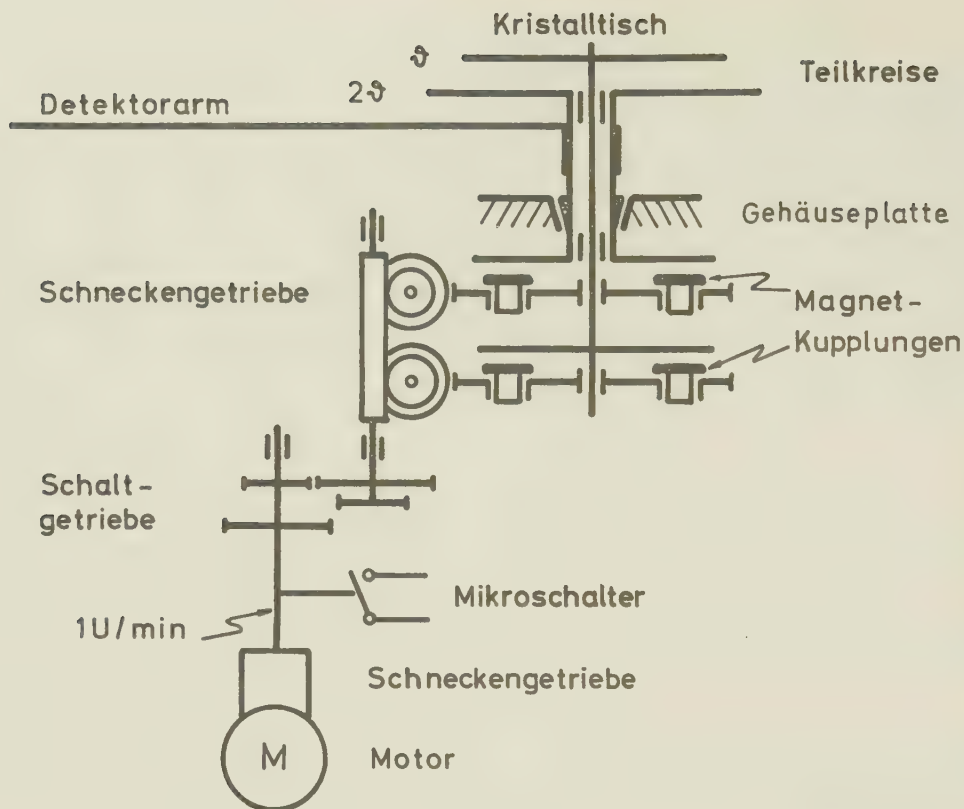


Abb. 1-6. Schematischer Aufbau des 2-Kreis-Gerätes

Abb. 1-6 zeigt den schematischen Aufbau des Spektrometers. In einer massiven Platte des Spektrometer-Gehäuses ist die Hohlwelle des Detektorarmes und in dieser die Welle mit dem Kristalltisch drehbar gelagert. Durch zwei elektromagnetische Kupplungen kann der Antrieb der beiden Wellen abgeschaltet werden. Die 1:2-Winkelbedingungen für die Kristall- und für die Detektor-Welle wird mechanisch durch ein zweistufiges Schneckengetriebe eingehalten.

Angetrieben werden die beiden Spektrometer-Wellen von einem Drehstrom-Motor (Leistung 15 W, Drehmoment = 170 cm p, Drehzahl = 1500 U/min) über verschiedene Zahnrad- und Schneckengetriebe mit einer Gesamt-Untersetzung von 3600:1 für die Detektor-Welle. Mit einem Schaltgetriebe kann man die Untersetzung auf 7200:1 erhöhen. Die Drehrichtung kann durch Umschalten von zwei Phasen geändert werden.

Das Einkristall-Spektrometer kann kontinuierlich oder schrittweise betrieben werden. Die Drehgeschwindigkeiten für die Detektor-Welle sind bei kontinuierlichem Betrieb 6'/min bzw. 3'/min. Bei Schritt-Betrieb betätigt ein Stift auf der Hauptantriebsachse mit 1 U/min einen Mikroschalter, der die Drehbewegungen der Spektrometerwellen unterbricht. Die kleinste Schrittweite der Detektorwelle beträgt 3'; mit einem Speicherrelais im Steuergerät der Anlage können Vielfache dieser Schrittweite bis zu einem Maximalwert von 1° eingestellt werden.

Mit den Spektrometerachsen λ und 2λ fest verbunden sind Teilkreise mit einem Durchmesser von 24 cm bzw. 26 cm. Eine Nullmarke wird mit Justierschrauben auf die Mitte des Primärstrahles eingestellt. Die Winkelpositionen des Kristalltisches und des Detektorarmes können gegenüber dem einfallenden Neutronenstrahl mit einem Nonius auf 1' genau abgelesen werden.

Die Detektorachse läßt sich in dem Winkelbereich $2\lambda = -30^{\circ}$ bis $+150^{\circ}$ bewegen.

Das 2-Kreis-Gerät wurde von der Firma V. Jäger, Darmstadt, gebaut.

Goniometer

Zur Positionierung des Monochromatorkristalles dient ein Goniometer mit einer vertikalen und einer horizontalen Rotationsachse. Mit der vertikalen Drehachse, die mit der λ -Achse des Spektrometers zusammenfällt, wird der Reflexionswinkel eingestellt. Mit der horizontalen Drehachse läßt sich die Reflexionsebene des Kristalles senkrecht stellen. Der Drehpunkt dieser Achse liegt 6,5 cm über dem Kristalltisch des Goniometers, der Drehbereich beträgt $\pm 25^\circ$. Außer den beiden Rotationsachsen besitzt das Goniometer einen Kreuzschlitten für zwei zueinander senkrechte Translationen in der horizontalen Ebene. Damit läßt sich die vertikale Drehachse des Kristalles verschieben.

Die Bewegung des Goniometers um die senkrechte Drehachse wird vom Spektrometer, die anderen Bewegungen werden über Schneckengetriebe manuell ausgeführt.

Detektor

Für den Nachweis thermischer Neutronen bei Beugungsversuchen können verschiedene Detektortypen verwendet werden (Egelstaff /118/, Jex /119/). Meistens werden BF_3 -Proportionalzählrohre benutzt mit Nachweisempfindlichkeiten für thermische Neutronen bis zu 95 % und sehr kleinen Impulsen für registrierte γ -Quanten. Diese können noch mit einem Impulshöhendiskriminator praktisch vollständig unterdrückt werden.

Als Detektor für den reflektierten Neutronenstrahl wurde bei diesem Einkristall-Spektrometer ein BF_3 -Proportional-Zählrohr der Firma 20th-Century (Type 31 EB 70 G) verwendet. Die technischen Daten und die Betriebsdaten des Zählrohres sind: Durchmesser = 1 Zoll, aktive Länge = 31 cm, 96 % angereichertes B^{10} , Gasdruck 70 cm Hg, Betriebsspannung = 2,2 kV, Gasvervielfachung etwa 30.

Ein Monitorzähler zur Kontrolle des Primärstrahles wurde bei den Messungen mit dem Einkristall-Spektrometer nicht eingesetzt. Nach Angabe der Reaktorbetriebsgruppe beträgt die Schwankung der Reaktorleistung innerhalb der Meßzeiten von etwa 20 Stunden weniger als 1 %. Dieser Wert hat sich bei Kontrollmessungen der Intensität des Primärstrahles jeweils vor und nach einer Messung bestätigt.

Detektorabschirmung

Der im Detektor registrierte Neutronen-Untergrund sollte möglichst klein sein, um auch Reflexe geringer Intensität bei vernünftigen Meßzeiten mit genügender statistischer Genauigkeit messen zu können. Der Untergrund setzt sich aus Neutronen, die von der Probe inkohärent elastisch, inkohärent inelastisch und kohärent inelastisch gestreut werden, und Neutronen aus der Reaktorhalle zusammen. Nur der letztere Anteil läßt sich durch eine gute Abschirmung und ein sorgfältig justiertes Blendensystem verringern, so daß der Zähler nur die Probe "sieht".

Die Abschirmung für das Zählrohr mit 1 Zoll Durchmesser besteht von innen nach außen aus 1/2 mm Cadmium, 5 mm Borkarbid und 11 cm Paraffin mit einem Gesamtgewicht von etwa 30 kg. Zählrohr und Abschirmung können auf dem Detektorarm des Spektrometers seitlich und in der Höhe mit vier Justierschrauben verstellt werden.

Der Vorverstärker (Ekco, $29 \times 16 \times 8 \text{ cm}^3$) konnte nicht in die Abschirmung mit eingebaut werden, da wegen seiner großen Abmessungen das Gewicht der Abschirmung für den Detektor zu groß geworden wäre. Dadurch ist das Zählrohr in Rückwärtsrichtung in einem Raumwinkel von etwa $8 \cdot 10^{-3}$ sterad nicht abgeschirmt. Durch diese Abschirmung konnte der Untergrund am Meßort um den Faktor 10^3 auf 0,1 Imp/sec reduziert werden.

Strahlenfänger

Der Primärstrahl wurde in einem Abstand von 2,8 m von der Reaktorwand in einem Strahlenfänger aufgefangen (siehe Abb. 1-1,2). Der Strahl fällt auf einen Bleiklotz ($F = 20 \times 20 \text{ cm}^2$, $l = 10 \text{ cm}$), der als Streuer für schnelle Neutronen dient und die γ -Strahlung teilweise absorbiert. Dieser Bleistreuer sitzt in der Mitte eines Quaders ($F = 0,5 \times 0,5 \text{ m}^2$, $l = 1 \text{ m}$) aus Borparaffin mit etwa 80 Gew.% Paraffin als Moderatorsubstanz für schnelle Neutronen und etwa 20 Gew.% Borsäure als Absorber für thermische Neutronen. In der Längsachse bis zur Mitte des Quaders läuft für den Primärstrahl ein Kanal mit einem Querschnitt von $20 \times 20 \text{ cm}^2$. Das Borparaffin ist umgeben von Schwerbeton (83 Gew.% Magnetit, 8,8 Gew.% Zement, 3,4 Gew.% Borkalzit, 4,3 Gew.% Wasser, Dichte $3,86 \text{ g/cm}^3$). Die Betonumhüllung ist aus mehreren Teilstücken, die handlicher und vielfältiger verwendbar sind, zusammengesetzt. Zwei Klötze mit je $1 \times 1 \times 0,4 \text{ m}^3$ bilden die beiden Enden des Strahlenfängers, der vordere ist für den Strahleintritt mit einer Öffnung von $15 \times 20 \text{ cm}^2$ Querschnitt versehen; das röhrenförmige Mittelteil ist aus zwei horizontalen Platten mit je $1 \times 1 \times 0,25 \text{ m}^3$ und aus zwei vertikalen Platten mit je $1 \times 0,5 \times 0,25 \text{ m}^3$ zusammengesetzt. Der Strahlenfänger hat ein Gesamtgewicht von etwa 6,5 to. Er ist auf einem Gestell aus T-Trägern aufgebaut, seine Höhe ist durch sechs Spindeln verstellbar. Der Strahlenfänger muß sorgfältig einjustiert werden, damit der Strahl in der Mitte des Kanals einläuft. Beim Justieren haben sich als einfachste und schnellste Methoden für die Bestimmung der räumlichen Lage und Verteilung der γ -Strahlung als auch der thermischen Neutronen die photographischen Nachweisverfahren bewährt (Jex, Müllner /120/).

Die Öffnung im vorderen Betonklotz wird man zweckmäßigerweise bis auf den Querschnitt des einlaufenden Strahles mit Bleisteinen verengen, so daß die Rückstreuung aus dem Strahlenfänger möglichst gering wird.

Dieser Strahlenfänger genügt den Sicherheitsbestimmungen des Strahlenschutzes (Müllner /121/) für Strahlungen mit Intensitäten bis zu 10^8 thermische Neutronen/sec, 10^8 schnelle Neutronen/sec und 30 r/h γ -Strahlung. Dies gilt für den Fall, daß der Strahlenfänger direkt an der Reaktorwand steht.

Aufbau und Justierung

Die Messung der Energie von Neutronen mit einem Einkristall-Spektrometer erfordert eine genaue Messung des Reflexionswinkels, für Intensitätsmessungen über einen bestimmten Energiebereich müssen Primär- und reflektierter Strahl und Detektor in dem entsprechenden Meßbereich in einer Ebene liegen.

Deshalb sind beim Aufbau und bei der Justierung von Einkristall-Spektrometern die folgenden Forderungen sorgfältig zu beachten:

1. Die Drehachsen des Spektrometers (ϑ - und 2ϑ -Achse) und die vertikale Drehachse des Goniometers sollen kollinear sein und die Mittelachse des Reaktor-Kollimators schneiden.
2. Die zu den Spektrometerachsen senkrechten Mittelebenen der Kollimatoren sollen koplanar sein.
3. Der Drehpunkt des Goniometers soll in der Mittelebene der Kollimatoren liegen.
4. Die Mittelachsen der Kollimatoren sollen in der Winkelposition $2\vartheta = 0$ kollinear sein.

Bei einem dejustierten Gerät hat man einen Verlust in der Intensität und eventuell einen erhöhten Strahlungsuntergrund. Beide Meßgrößen können energieabhängig sein.

Der Aufbau und die Justierung dieses Einkristall-Spektrometers wurde in folgenden Schritten vorgenommen:

1. Die vertikale Wandung des Reaktor-Kollimators wurde mit einer Wasserwaage senkrecht gestellt.
2. Die Mittellinie des Primärstrahles wurde mit einer dünnen Nylonsehnur, die in der Achse des Reaktor-Kollimators straff gespannt war, bestimmt und an verschiedenen Raumpunkten, wie z.B. der Hallenwand des Reaktorgebäudes, markiert. Kontrollmessungen mit Neutronen- und Gamma-Zählrohren mit 1 mm breiten Blenden ergaben innerhalb des Meßfehlers die gleiche Position für die Mitte des Primärstrahles wie bei der obigen einfachen, schnellen Methode.

3. Für die genaue Aufstellung des Spektrometers vor dem Reaktor-Kollimator wurde eine Justierspitze auf den Probenteller (ohne Goniometer) aufgesteckt, deren Achse mit den Spektrometer-Achsen zusammenfällt und deren Ende in der horizontalen Drehachse des Goniometers liegt. Die Spektrometer-Drehachsen wurden senkrecht ausgerichtet, ihre Richtung mit einer Wasserwaage kontrolliert, das Ende der Spitze wurde auf die Höhe der Mittellinie des Primärstrahles (=Nylonschnur) gebracht.
4. Die vertikale Achse des Goniometers wurde senkrecht gestellt. Das Goniometer ist auf dem Probenteller drehbar aufgesteckt; die Achse des Rundstabes für die Kristallhalterung ist mit der vertikalen Drehachse kollinear. Beim Drehen des Goniometers können Schwankungen des Rundstabes mit einer Meßuhr leicht ermittelt und korrigiert werden.
5. Die vertikale Wandung des Detektor-Kollimators wurde mit einer Wasserwaage senkrecht ausgerichtet.
6. Die Mittellinie des Detektor-Kollimators und der Detektorabschirmung wurde bei $2\vartheta = 0$ auf die Mitte des Primärstrahles (= Nylonschnur) einjustiert.
7. Der Nullpunkt der Winkelskala, von dem der Reflexwinkel und damit die Energie-Skala empfindlich abhängt, wurde auf das Maximum der Intensitäts-Verteilung des Primärstrahles gestellt. Die Winkel-Position ϑ des Maximums wurde aus einer an die Meßwerte angepaßten Gaußkurve ermittelt. Der Fehler beträgt $\Delta\vartheta = \pm 0,2'$.

Detektorelektronik

Die Meßelektronik ist im Blockdiagramm Abb. 1-7 wiedergegeben.
Die Meßkanäle für den Detektor und Monitor sind identisch aufgebaut und bestehen aus:

Hochspannungsgerät:	Nuclear Enterprises NE 5303, 1-5 kV für Detektorzählrohr Ekco N 570 B, 0,5-3 kV für Monitorzählrohr
Vorverstärker:	Ekco, 50-fach unmittelbar nach dem Zählrohr
Verstärker:	Ekco N 568 B, Verstärkung 200 - 20 000
Diskriminator:	Im Ratenmesser Ekco N 522 B enthalten
Zählratenmesser:	Ekco N 522 B, Zählbereich bis 10^4 Pulse/sec
Zeitgeber:	Eigenbau, 10 Hz Impulsgeber, (Untersetzerstufe 5-fach für Netzfrequenz)
Zähler:	Beckmann/Berkeley 7060, 6 Dekaden, 1,2 MHz

Die Meßergebnisse werden im kontinuierlichen Betrieb des Spektrometers von einem

Schreiber: Hartmann und Braun, Linecomp
und im Schrittbetrieb von einem

Drucker: Beckmann/Berkeley, Mod. 1452
registriert.

Ein Steuergerät (Eigenbau) regelt den vollautomatischen Ablauf der Vorgänge bei der schrittweisen Messung.

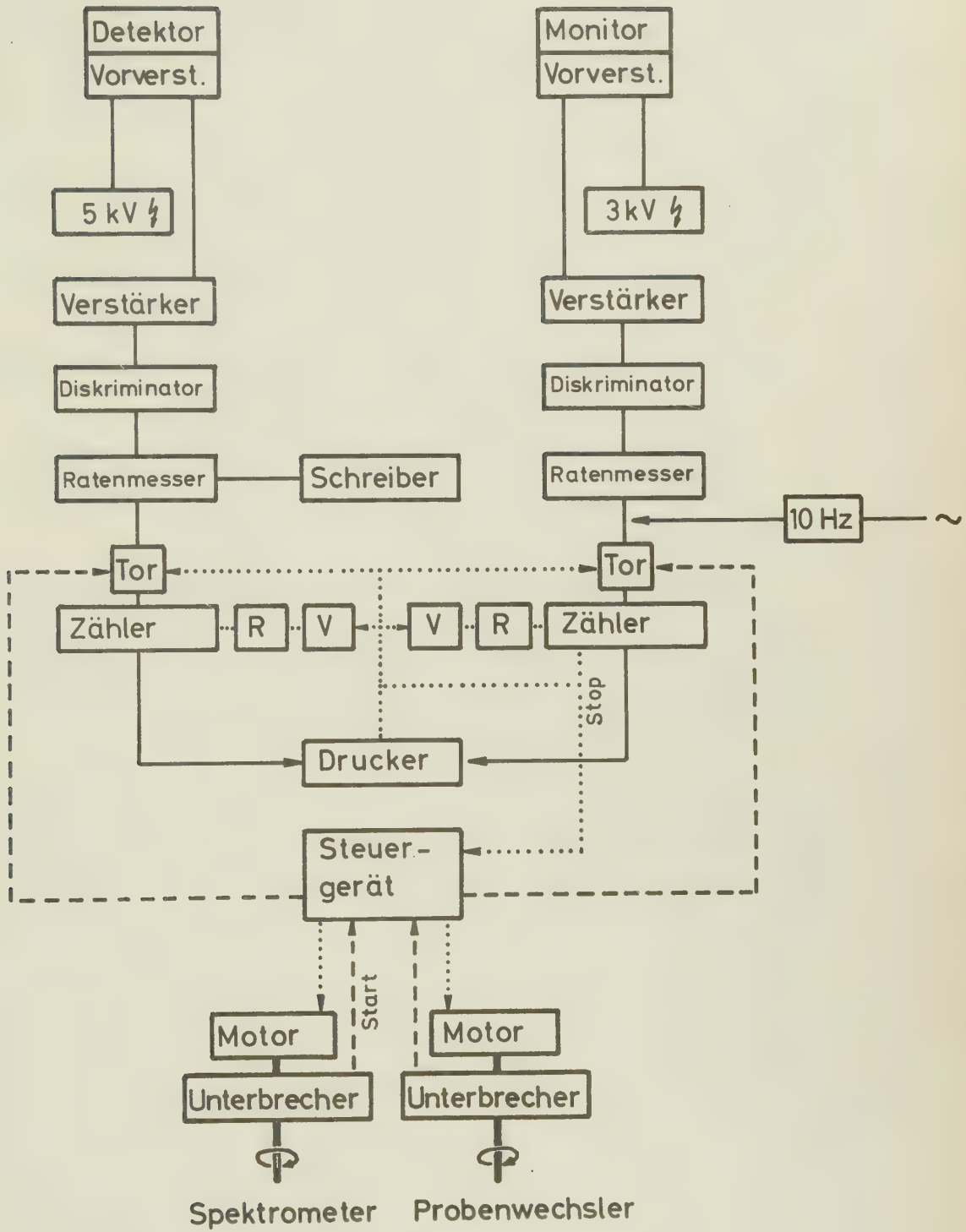


Abb. 1-7. Blockdiagramm der Meß- und Steuerelektronik

Meßzyklus

Beim vollautomatischen Schrittbetrieb des Spektrometers sind zunächst die Ausgangspositionen der Winkel α des Kristalltisches und 2α des Detektorarmes einzustellen und der Detektor- und Monitor-Zähler zu starten, dann laufen die folgenden Vorgänge nacheinander automatisch ab:

1. Ist die vorgewählte Impulszahl im Monitor erreicht, so werden mit einem Signal
die Zähler gestoppt, indem die Tore geschlossen werden,
der Detektorzähler vom Drucker abgefragt und die Zahl der Detektorimpulse ausgedruckt,
beide Zähler nach einer Verzögerungszeit, die für das Abfragen nötig ist, auf Null zurückgestellt,
der Antriebsmotor des Spektrometers in Gang gesetzt.
2. Nachdem sich Kristall und Detektor um den vorgewählten Winkelschritt weitergedreht haben, werden die Tore beider Zähler geöffnet. Der Zyklus beginnt von neuem.

In den Monitorzählern kann man Impulse des Zählrohres oder bei konstanter Reaktorleistung Impulse des Zeitgebers (Netzfrequenz-Untersetzerstufe) einspeisen. Die Konstanz der Netzfrequenz beträgt $\pm 1\%$.

Will man die Intensität an sämtlichen Meßpunkten mit der gleichen statistischen Genauigkeit messen, so stellt man die entsprechende Impulsvorwahl im Detektorzähler ein und registriert die Monitorimpulse.

Für Transmissionsmessungen in Abhängigkeit der Energie werden das Spektrometer und ein Probenwechsler so gesteuert, daß bei jeder vorgewählten Winkelposition im monochromatischen Strahl eine Messung mit und eine ohne Probe erfolgt.

Beim kontinuierlichen Betrieb werden in Schritten von 6' (bzw. 3', je nach Einstellung des Schaltgetriebes) des Winkels 2λ vom Steuergerät auf den Schreiber Pulse gegeben, die die Winkelpositionen des Detektorarmes markieren.

II. Messungen mit dem Einkristall-Spektrometer

Neutronenfluß im Strahlkanal L 6

Für die Justierung des Einkristall-Spektrometers wurde die Intensitätsverteilung des Primärstrahles nach dem Reaktor-Kollimator gemessen. Aus dem maximalen Wert dieser Verteilung kann man den Neutronenfluß an der Endfläche des Reaktorkanals berechnen. Die prinzipielle Meßanordnung zeigt die Abb. 2-1.

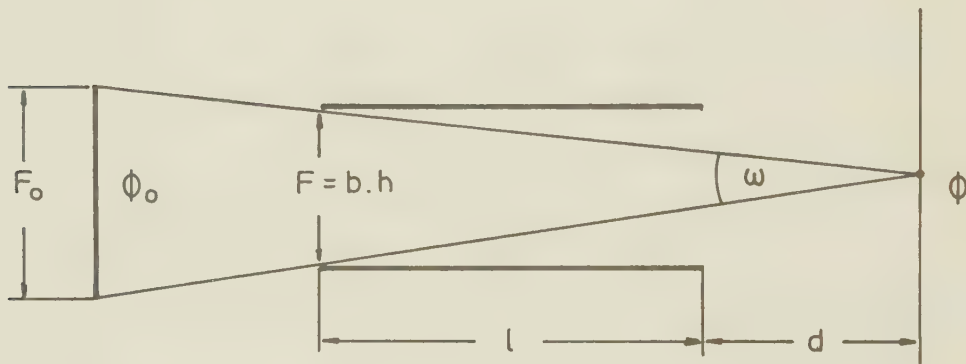


Abb. 2-1.

Danach errechnet sich der Neutronenfluß ϕ_0 an der Endfläche eines Reaktorkanals nach den Beziehungen

$$\frac{\phi}{\phi_0} = \frac{\omega}{4\pi}$$

$$\omega = \frac{\bar{r}}{(l+d)^2}$$

$$\phi = \frac{J}{\bar{r}_{Det.}} \quad (\bar{r}_{Det.} \leq b \cdot h)$$

zu

$$\phi_0 = 4\pi \frac{(l+d)^2}{b \cdot h} \frac{J}{\bar{r}_{Det.}}$$

(2-1)

Es bedeuten (s. auch Abb. 2-1)

ϕ_0 = Neutronenfluß an der Endfläche des Kanals
 ω = Raumwinkel am Aufpunkt
 F = b.h = Kollimator-Querschnitt
 l = Länge des Kollimators
 d = Abstand des Aufpunktes vom Kollimator
 F_{Det} = Detektorfläche
 I = gemessene Intensität

Mit den folgenden Daten (s. Abb. 1-3)

l = 1630 mm
 d = 1330 mm
 b = 6 mm
 h = 18 mm
 I = $3,2 \cdot 10^5$ n/sec ± 5 % bei 50 kW
(F_{Det} = $5 \times 17 \text{ mm}^2$)

erhält man für den Neutronenfluß

$$\phi_0 = 3,84 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec} \pm 5 \%$$

Dieser Wert soll mit dem von Stelzer /122/ aus Sondenmessungen ermittelten Fluß

$$\phi_0 = 3,38 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec} \pm 5 \%$$

verglichen werden.

Mit dem BF_3 -Zählrohr mißt man bei vollständiger Absorption aller Neutronen den Fluß

$$\phi_Z = \int n(v) v dv = n \bar{v} \quad \begin{array}{l} n(v) = \text{Neutronendichte} \\ v = \text{Neutronenge-} \\ \quad \text{schwindigkeit} \end{array}$$

Der Fluß nach der Sondenmessung ist angegeben in

$$\phi_S = n v_0$$

$$v_0 = 2200 \text{ m/sec}$$

Rechnet man die kinetische Energie in Temperatureinheiten kT , so ergibt sich für das Verhältnis der Flüsse

$$\frac{\phi_Z}{\phi_S} = \frac{\bar{v}}{v_0}$$

Da bei einer Maxwell-Verteilung $\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_T$ ist, wird

$$\frac{\phi_Z}{\phi_S} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{v_T}{v_0} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{T}{T_0}} = 1,128 \sqrt{\frac{T}{T_0}} \quad (2-2)$$

Nach Roßberg /123/ beträgt die Temperatur der Neutronen am Ende des Strahlkanals L 6,34 cm vom Zentrum des Reaktorcores entfernt, $T = 388^\circ \text{ K}$. Das Verhältnis der Flüsse errechnet sich somit zu $\phi_Z/\phi_S = 1,3$; das Verhältnis der gemessenen Flüsse ist

$$\frac{\phi_Z}{\phi_S} = \frac{3,84 \pm 5 \%}{3,38 \pm 5 \%} = 1,1 \pm 7 \%$$

Dieser gemessene Wert muß kleiner sein als der berechnete, da die Nachweisempfindlichkeit des Zählrohres (aktive Länge 31 cm, 70 cm Hg, 96 % angereichertes B^{10}) maximal nur 78 % bei 0,025 eV erreicht (s. Abb. 4-3).

Mosaikverteilung der Monochromatorkristalle

Die Halbwertsbreite der Mosaikverteilung eines Kristalles läßt sich aus der Halbwertsbreite der Intensitätsverteilung bestimmen, die man erhält, wenn man bei feststehendem Detektorwinkel 2ϑ den Kristall durch die Bragg-Stellung ϑ dreht. Diese Verteilung wird in der englischen Literatur als "rocking-curve" bezeichnet. Sailor et al. /9/ haben den Einfluß der Mosaikverteilung und der Kollimatoren auf die Halbwertsbreite einer solchen Intensitätsverteilung berechnet, jedoch nur für den Fall gleicher Divergenz des Reaktor- und des Detektor-Kollimators ($\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$).

Im folgenden wird die Intensitätsverteilung für verschiedene Kollimatordivergenzen ($\alpha_1 \neq \alpha_2$) mit den gleichen Bezeichnungen, wie sie Sailor et al. /9/ verwendet haben, berechnet. Die Abb. 2-2 zeigt den Strahlengang der Meßanordnung.

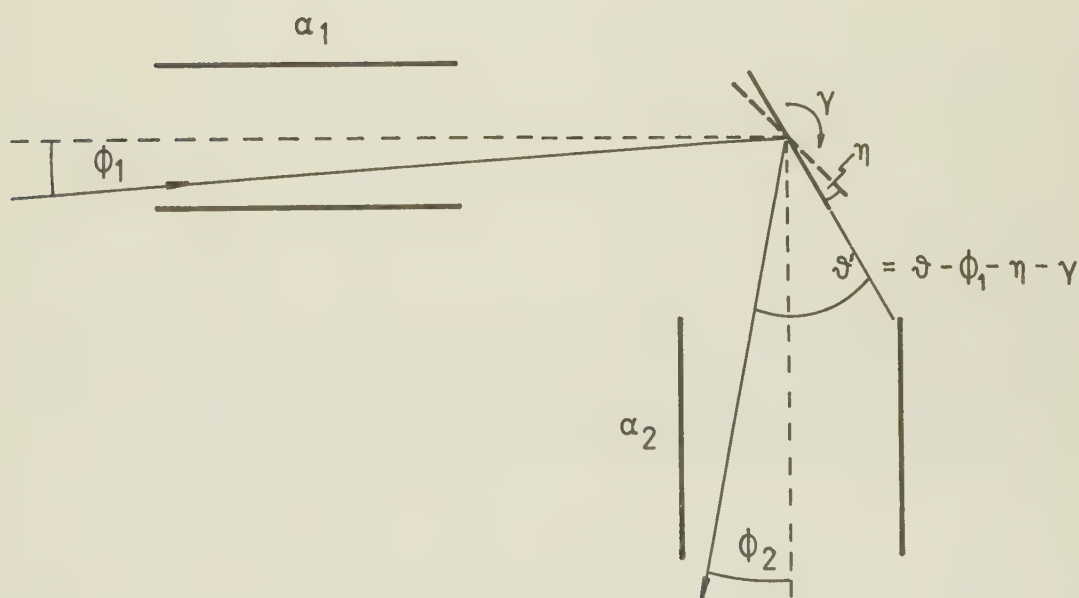


Abb. 2-2.

Die Transmissionsfunktion des Reaktorkollimators mit der Winkeldivergenz $\alpha_1 \equiv \frac{s_1}{l_1}$ (s_1 = Breite, l_1 = Länge des Kollimators) in Abhängigkeit vom Winkel ϕ_1 zwischen einfallendem Neutronenstrahl und der Achse des Kollimators wird angenähert durch eine Gauß-Verteilung

$$T_1(\phi_1) = T_0 \exp - \left(\phi_1 / \alpha'_1 \right)^2 \quad (2-3)$$

$$\alpha'_1 = \alpha_1 / 2 \sqrt{\ln 2}$$

T_0 ist die maximale Intensität für $\phi_1 = 0$.

Eine analoge Gleichung gilt für den Detektorkollimator mit der Winkeldivergenz α_2

$$T_2(\phi_2) = \exp - \left(\phi_2 / \alpha'_2 \right)^2 \quad (2-4)$$

$$\alpha'_2 = \alpha_2 / 2 \sqrt{\ln 2}$$

Ebenso wird für die Reflektivität des Mosaikkristalles eine Gauß-Verteilung angenommen.

$$R(\eta) = R_0(\beta') \exp - \left(\eta / \beta' \right)^2 \quad (2-5)$$

$$\beta' = \beta / 2 \sqrt{\ln 2}$$

wobei η die Winkelabweichung der Mosaikblöcke von der mittleren Richtung der Reflexionsebene, $R_0(\beta')$ die maximale Reflektivität für $\eta = 0$ und β die Halbwertsbreite dieser Verteilung bedeuten. Wird der Kristall um den Winkel γ aus der Bragg-Richtung $\mathcal{S}$ des zentralen Strahles gedreht, so ist der Bragg-Winkel zwischen einem reflektierten Neutronenstrahl und der Reflexionsebene

$$\mathcal{S}' = \mathcal{S} + \phi_1 + \eta + \gamma \quad (2-6)$$

Die Intensitätsverteilung der Neutronen nach dem Detektorkollimator als Funktion von $\delta = \mathcal{S}' - \mathcal{S}$ und dem Drehwinkel γ des Kistalles ist

$$T(\gamma, \delta) = \int_{\phi_{1,a}}^{\phi_{1,b}} T_1(\phi_1) R(\eta) T_2(\phi_2) d\phi_1 \quad (2-7)$$

Mit den Beziehungen

$$\phi_1 = \delta - \gamma - r, \quad \phi_2 = \delta + \gamma + r$$

und den Gleichungen (2-3,4,5) erhält man

$$J(r, \delta) = J_0 R_0(\beta) \int_{\gamma_b}^{\gamma_a} d\gamma \exp - \left\{ \left(\frac{\delta - \gamma - r}{\alpha'_1} \right)^2 + \left(\frac{\gamma}{\beta'} \right)^2 + \left(\frac{\delta + \gamma + r}{\alpha'_2} \right)^2 \right\} \quad (2-8)$$

Die Integration der Gleichung (2-8) über δ ergibt

$$J(r) = \int J(r, \delta) d\delta = J(0) \exp - \left\{ \frac{r^2}{\frac{\alpha_1'^2}{4} + \beta'^2 + \frac{\alpha_2'^2}{4}} \right\} \quad (2-9)$$

$J(0)$ enthält sämtliche Konstanten und gibt die Intensität der Verteilung für $\gamma = 0$ an.

Die Halbwertsbreite dieser Verteilung ist

$$A_{\frac{1}{2}} = \sqrt{\frac{\alpha_1'^2}{4} + \beta'^2 + \frac{\alpha_2'^2}{4}} \quad (2-10)$$

Für $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$ erhält man für die Halbwertsbreite der "rocking curve" den von Sailor et al. /9/ berechneten Wert

$$A_{\frac{1}{2}} = \sqrt{\frac{\alpha^2}{2} + \beta^2} \quad (2-11)$$

Nach Gleichung (2-10) läßt sich also die Halbwertsbreite β der Mosaikverteilung aus der Halbwertsbreite der "rocking curve" und den Winkeldivergenzen der beiden Kollimatoren berechnen. Mit dem Einkristall-Spektrometer (s. Abb. 1-1,2) wurden verschiedene Blei- und Kupfereinkristalle untersucht.

Aus einem Kupfereinkristall mit 1,5" $\emptyset$, 5" lang,
 einem Bleieinkristall mit 1,5" $\emptyset$, 5" lang,
 beide Kristalle vom Virginia-Institute for Scientific Research,
 Richmond,

und aus einem Bleieinkristall mit 8 cm $\varnothing$, 15 cm lang
vom M.P.I. für Eisenforschung, Düsseldorf,
wurden vom Eduard-Zintl-Institut, Darmstadt, 11 Kristalle mit
verschiedenen Orientierungen geschnitten:

Pb(111)

Cu(111), (200), (220).

Die Intensitätsverteilungen der Kristalle wurden in Reflexion
(teilweise auch in Transmission) bei einem Detektorwinkel von
 $2\vartheta = 25^\circ$ aufgenommen. Die Abb. 2-3 zeigt diese Verteilung für
den Bleieinkristall Pb(111) Nr. 11 in Reflexion.

Die Halbwertsbreiten der "rocking curves" der Kristalle, die aus
dem gleichen Einkristall-Barren geschnitten wurden, sind praktisch
immer gleich groß. Mit $\alpha_1 = 13'$ und $\alpha_2 = 30'$ ergeben sich die
Halbwertsbreiten der Mosaikverteilung nach Gleichung (2-10) zu

$$\beta = \sqrt{A_{1/2} - \frac{\alpha_1^2}{4} - \frac{\alpha_2^2}{4}} \quad (2-12)$$

Die Ergebnisse zeigt die folgende Zusammenstellung:

		$A_{1/2}$	β
Cu-Kristalle	Virginia-Institute	21'	13'
Pb-Kristalle	Virginia-Institute	21'	13'
Pb-Kristalle	Max-Planck-Institut	28'	23'

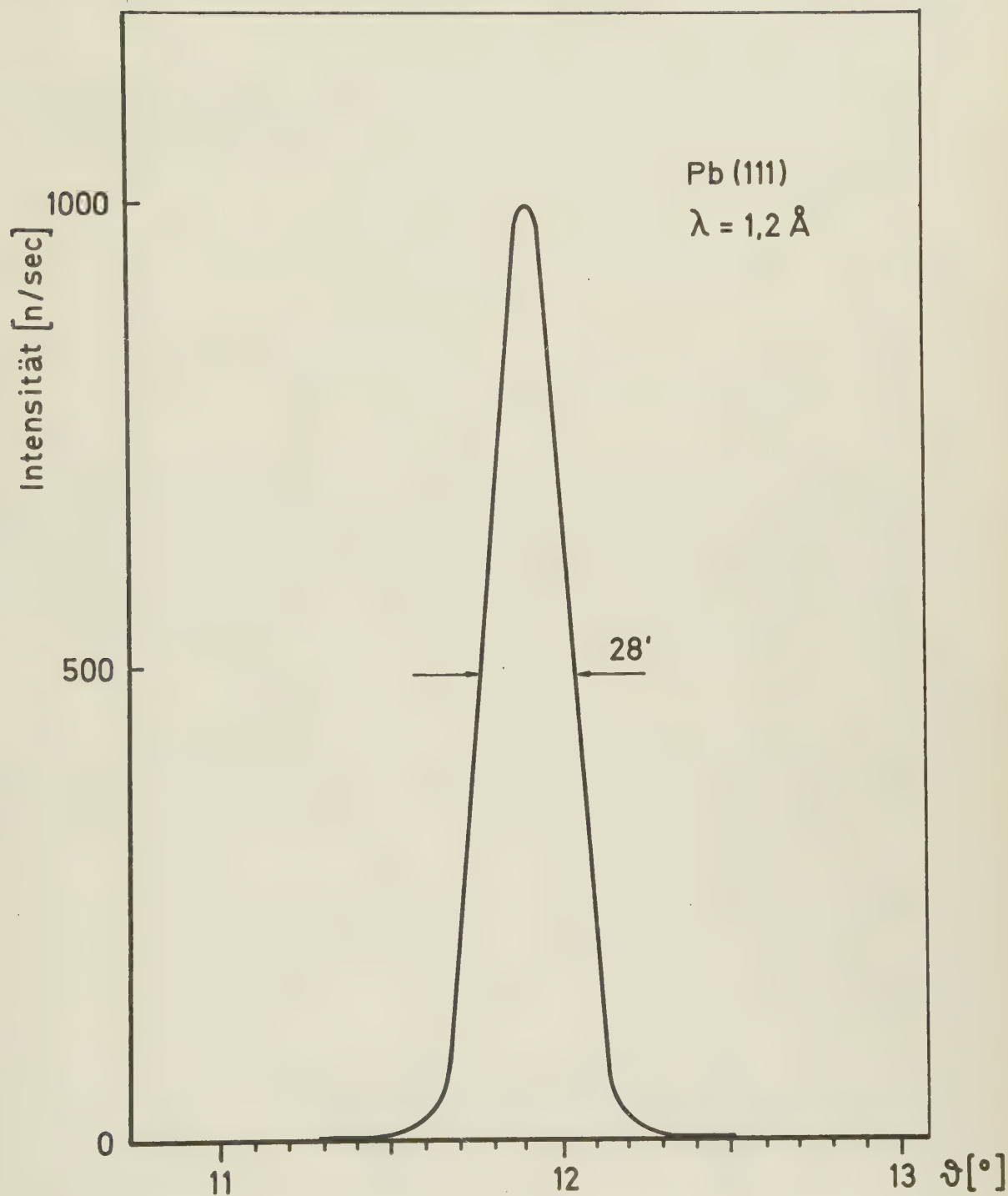


Abb. 2-3. "rocking curve" des Blei-Einkristalls in Reflexion

Auflösungsvermögen des Spektrometers

Für die Beugung von Neutronen durch einen Einkristall gilt die Bragg-Beziehung (1-1).

Eine Ungenauigkeit im Bragg-Winkel ergibt eine Ungenauigkeit in der Wellenlänge der Neutronen. Durch Differentiation der Gleichung (1-1) nach ϑ erhält man

$$\Delta \lambda = \frac{2d}{n} \cos \vartheta \Delta \vartheta \quad (2-13)$$

oder

$$\left(\frac{\Delta \lambda}{\Delta \vartheta} \right)^2 + \lambda^2 = \left(\frac{2d}{n} \right)^2 \quad (2-14)$$

Man erhält die Gleichung eines Kreises mit dem Radius $2d/n$. Aus der graphischen Darstellung Abb. 2-4 lassen sich für eine bestimmte Netzebene d eines Monochromatorkristalles die Größen $\Delta \lambda / \Delta \vartheta$ zu verschiedenen Wellenlängen λ ablesen. Um den Fehler $\Delta \lambda$ zu erhalten, ist noch die Ungenauigkeit im Bragg-Winkel $\Delta \vartheta$ zu bestimmen.

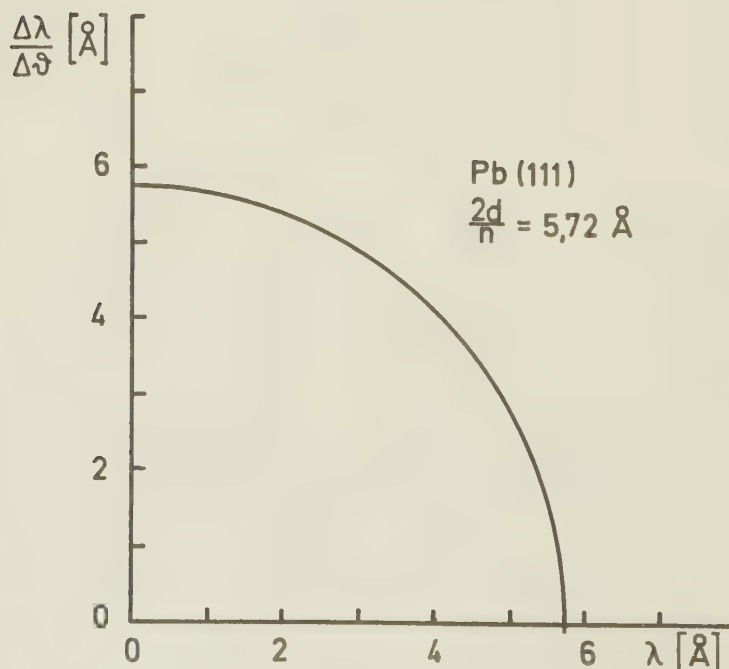


Abb. 2-4. Auflösungsvermögen für Pb(111)
als Funktion der Wellenlänge

Für die relative Auflösung eines Spektrometers erhält man nach den obigen Gleichungen (1-1) und (2-13)

$$\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = \lg \lambda \Delta \lambda \quad (2-15)$$

und mit den Beziehungen

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{(2mE)^{\frac{1}{2}}} = 0,2860/\sqrt{E} \quad [\text{\AA}] \quad (2-16)$$

$$E = 0,0818/\lambda^2 \quad [\text{eV}] \quad (2-17)$$

die relative Energieauflösung

$$\frac{\Delta E}{E} = 2 \frac{\Delta \lambda}{\lambda} = 2 \lg \lambda \Delta \lambda \quad (2-18)$$

Es ist instruktiv, das Auflösungsvermögen des Kristallspektrometers mit dem des Flugzeitspektrometers zu vergleichen. Das Auflösungsvermögen eines Flugzeitspektrometers wird allgemein durch die Größe

$$\frac{\Delta E}{E^{\frac{3}{2}}} = 0,0278 K \quad [\text{eV}^{-\frac{1}{2}}] \quad (2-19)$$

angegeben, wobei $K = \Delta t/L$ ($\mu\text{sec}/\text{m}$) die Ungenauigkeit in der Bestimmung der Flugzeit der Neutronen auf dem Weg L bedeuten. K und damit auch $\Delta E/E^{\frac{3}{2}}$ sind apparative Konstanten.

Für Kristallspektrometer errechnet sich die gleiche Größe zu

$$\frac{\Delta E}{E^{\frac{3}{2}}} = 6,993 \frac{2d}{n} \Delta \lambda \cos \lambda = 6,993 \Delta \lambda \quad [\text{eV}^{-\frac{1}{2}}] \quad (2-20)$$

Hier ist $\Delta E/E^{\frac{3}{2}}$ nicht konstant, diese Größe hängt von $\cos \lambda$ und damit von der Energie ab. Als apparative Kenngröße für das Auflösungsvermögen von Kristall-Spektrometern führt man zweckmäßigerweise

$$k = \frac{2d}{n} \Delta \lambda \quad (\text{\AA}) \quad (2-21)$$

ein.

Für $\cos \vartheta \approx 1$, also für große Energien, ist dann $\Delta E/E^{3/2}$ praktisch konstant und man erhält eine dem Auflösungsvermögen des Flugzeit-spektrometers analoge Beziehung

$$\frac{\Delta E}{E^{3/2}} = 6,993 \text{ k} \quad (\text{eV}^{-1/2}) \quad (2-22)$$

Aus den Gleichungen (2-19) und (2-22) errechnet sich zwischen den apparativen Konstanten des Flugzeit- und des Kristall-Spektrometers der Zusammenhang

$$K = 252 \cdot k \quad (\mu\text{sec/m}) \quad (2-23)$$

Das Auflösungsvermögen eines Spektrometers hängt von der Ungenauigkeit im Bragg-Winkel $\Delta \vartheta$ ab, eine Größe, die sich aus der Anzahl der verwendeten Kollimatoren, deren Winkeldivergenzen, der Mosaikverteilung und der Extinktion im Monochromatorkristall ergibt.

In den folgenden Arbeiten wurde der Einfluß der Kollimatoren auf das Auflösungsvermögen und die Transmissionsfunktion von Einkristall-Spektrometern beschrieben: Sailor et al. /9/ haben die Winkelabhängigkeit der Auflösung und der Intensität für zwei Kollimatoren (Reaktor- und Detektor-Kollimator) mit gleicher horizontaler Winkeldivergenz theoretisch und experimentell untersucht. Bei den Rechnungen haben sie die sekundäre Extinktion im Monochromator-Kristall vernachlässigt. Rechnungen für zwei Kollimatoren mit verschiedenen Divergenzen α_1, α_2 wurden von Popovici und Gelberg /21/ veröffentlicht. Sie berücksichtigen auch die Sekundärextinktion im Kristall und finden, daß dieser Effekt im ungünstigsten Fall für $\beta/\alpha_1 \rightarrow \infty$ und $\alpha_2/\alpha_1 \rightarrow \infty$ die Auflösung höchstens um 15 % verschlechtert.

Die vertikale Winkeldivergenz der Kollimatoren hat nach Compton und Allison /22/ einen vernachlässigbaren Einfluß auf das Auflösungsvermögen.

Bei der Berechnung des Auflösungsvermögens für ein Spektrometer mit verschiedenen Kollimatordivergenzen werden die Methode und die Beziehungen nach Sailor et al. /9/ benutzt. Die spektrale Verteilung $I(\delta)$ des reflektierten Neutronenstrahles ist gegeben durch

$$J(\delta) = \int_{\phi_{1,a}}^{\phi_{1,b}} J_1(\phi_1) R(\gamma) J_2(\phi_2) d\phi_1 \quad (2-24)$$

Setzt man die Gleichungen (2-3,4,5) ein und berücksichtigt, daß $\delta \equiv \lambda' - \lambda$, $\phi_1 = \delta - \gamma$, $\phi_2 = \delta + \gamma$ ist, so erhält man nach der Integration

$$J(\delta) = J(0) \exp - \left\{ \frac{\alpha_1'^2 + \alpha_2'^2 + 4\beta^2}{\alpha_1'^2 \beta'^2 + \alpha_1'^2 \alpha_2'^2 + \alpha_2'^2 \beta'^2} \delta^2 \right\} \quad (2-25)$$

wobei $I(0)$ sämtliche Konstanten enthält und die maximale Intensität der Verteilung für $\delta = 0$ angibt.

Die Halbwertsbreite dieser Funktion ist gegeben durch

$$A_{\frac{1}{2}} = \left(\frac{\alpha_1'^2 \beta'^2 + \alpha_1'^2 \alpha_2'^2 + \alpha_2'^2 \beta'^2}{\alpha_1'^2 + \alpha_2'^2 + 4\beta'^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2-26)$$

Dieser Wert stimmt mit dem von Popovici und Gelberg /21/ angegebenen Wert überein, wenn die sekundäre Extinktion im Kristall vernachlässigt wird.

Haben beide Kollimatoren die gleiche Divergenz $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$, so erhält man das Ergebnis von Sailor et al./9/

$$A_{\frac{1}{2}} = \frac{\alpha}{\sqrt{2}} \quad (2-27)$$

In diesem Fall ist also die Auflösung eines Spektrometers unabhängig von der Mosaikverteilung β des Monochromatorkristalls und auch unabhängig von der sekundären Extinktion, wie Popovici und Gelberg gezeigt haben.

Verwendet man keinen Detektorkollimator, ist also $\alpha_2 = \infty$, dann ist die Auflösung des Spektrometers gegeben durch

$$A_{\frac{1}{2}} = \sqrt{\alpha_1'^2 + \beta'^2} \quad (2-28)$$

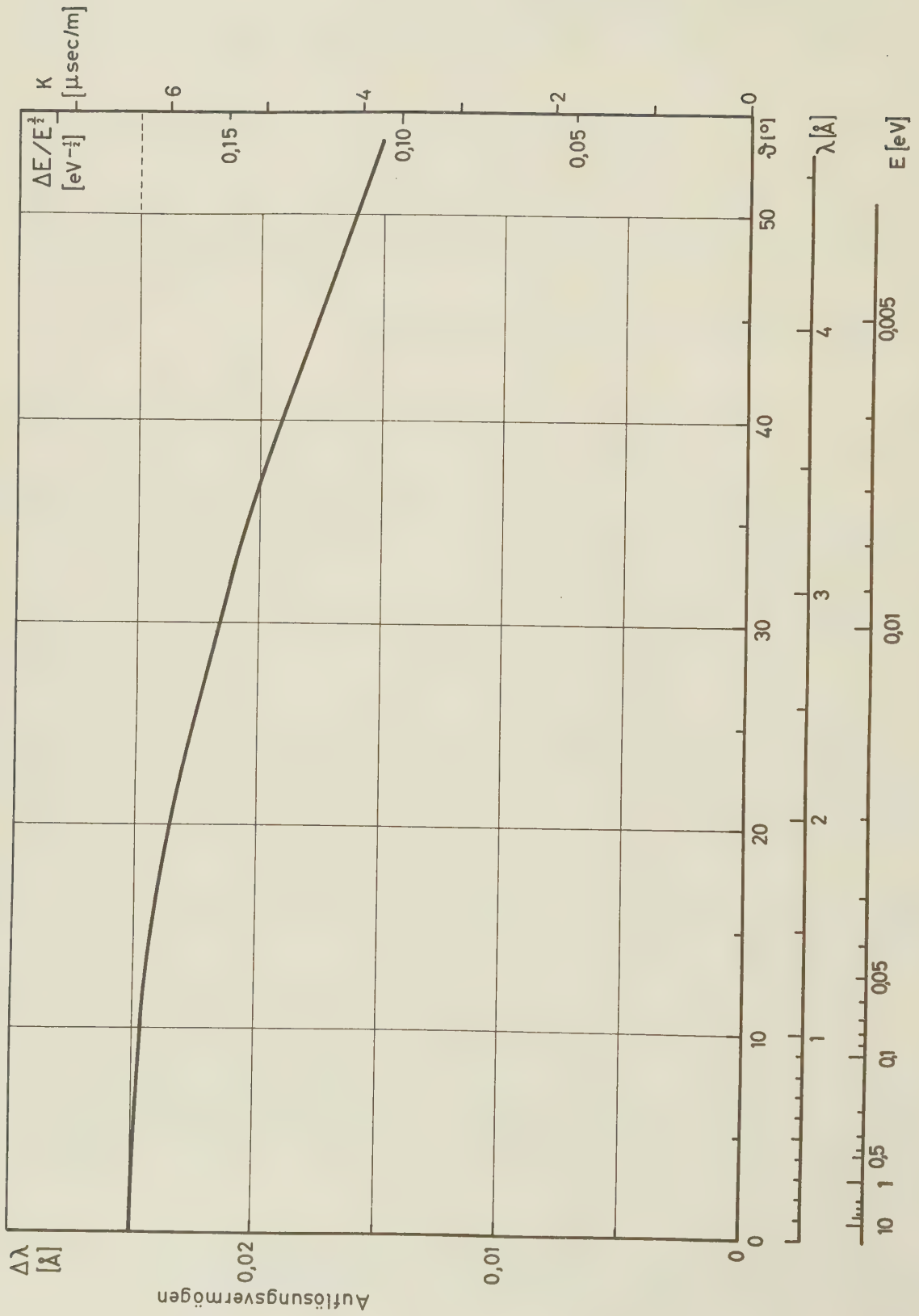


Abb. 2-5. Auflösungsvermögen des Einkristall-Spektrometers

Für das in dieser Arbeit verwendete Einkristall-Spektrometer zur Messung des Reaktor-Spektrums mit dem

Reaktorkollimator	$\alpha_1 = 13'$
Detektorkollimator	$\alpha_2 = 30'$
Monochromator Pb(111)	$\beta = 23'$

erhält man nach Gl. (2-26) eine Winkelauflösung von $\Delta\vartheta \equiv \Delta_{1/2} = 15'$.

Nach den Gleichungen (2-21,23) errechnet sich damit die apparative Konstante dieses Spektrometers zu

$$k = \frac{2d}{n} \Delta\vartheta = 0,025 \text{ [\AA]}$$

$$K = 252 k = 6,3 \text{ [\mu sec/m]}$$

und nach Gleichung (2-13) die Auflösungsfunktion zu

$$\Delta\lambda = k \cos\vartheta = 0,025 \cos\vartheta \text{ [\AA]}$$

die in Abb. 2-5 wiedergegeben ist.

An den Wänden der Kollimatoren tritt unterhalb eines bestimmten, sogenannten kritischen Winkels ϑ_c Totalreflexion der auffallenden Neutronen ein. Dieser kritische Winkel hängt von der kohärenten Streulänge der reflektierenden Oberfläche ab:

$$\vartheta_c = \lambda \left(\frac{N}{\pi} \sum_i g_i b_i \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2-29)$$

λ = Wellenlänge der Neutronen

N = Zahl der Streuzentren/cm³

b_i = Kohärente Streulänge des gebundenen Isotops i

g_i = relative Häufigkeit des Isotops i

Für Substanzen mit positiven Werten von b werden alle Neutronen, die unter kleinerem Winkel als dem kritischen auf die Kollimator-Oberfläche auftreffen, total reflektiert.

Tabelle I gibt für eine Wellenlänge der Neutronen von $\lambda = 1 \text{ \AA}$ den kritischen Winkel für Totalreflexion einiger Materialien an, die beim Bau von Kollimatoren verwendet werden.

Tabelle I. Kritischer Winkel für Totalreflexion einiger Substanzen

Substanz	ϑ_c ($\lambda = 1 \text{ \AA}$) (')
C	5,2
Al	2,8
Fe	5,5
Ni	5,9
Cu	5,0
Zn	3,8
Pb	3,4
Messing	4,5

Der Einfluß der Totalreflexion auf das Auflösungsvermögen und die Intensität eines Spektrometers wirkt sich erst dann aus, wenn die Divergenzwinkel der Kollimatoren etwa gleich oder kleiner als der kritische Winkel der Totalreflexion sind ($\alpha \leq \vartheta_c$). Das Auflösungsvermögen wird dann durch Totalreflexion an den Kollimatorwänden verschlechtert, die Intensität jedoch beträchtlich vergrößert. Für die Oberfläche eines Kollimators hat man deshalb ein solches Material auszusuchen, dessen kritischer Winkel kleiner als die geforderte Auflösung bei einer bestimmten Wellenlänge ist.

Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Messing-Kollimator mit $\alpha_{\text{hor.}} = 13'$ und $\vartheta_c = 4,5'$ braucht man also den Effekt der Totalreflexion bei der Berechnung des Auflösungsvermögens für den interessierenden Wellenlängenbereich $\lambda \leq 2 \text{ \AA}$ nicht zu berücksichtigen.

Für $\alpha = \vartheta_c$ haben Bally et al. /13/ das Auflösungsvermögen eines Einkristall-Spektrometers berechnet und experimentell untersucht.

Zählratenspektrum

Für die späteren Experimente mit dem Diffraktometer war es wichtig, welche der vorhandenen Monochromatorkristalle die größte Reflektivität besitzen und bei welchem Bragg-Winkel λ bzw. welcher Wellenlänge λ die Intensität der reflektierten Neutronen einen maximalen Wert besitzt. Die im Detektor registrierte Zählrate in einem Wellenlängenbereich zwischen λ und $\lambda + \Delta\lambda$ ist

$$Z(\lambda) = F \sum_{n=1}^m \phi\left(\frac{\lambda}{\lambda_n}\right) K\left(\frac{\lambda}{\lambda_n}\right) R\left(\frac{\lambda}{\lambda_n}\right) \varepsilon\left(\frac{\lambda}{\lambda_n}\right) \Delta\lambda \quad (2-30)$$

- F = Detektorfläche
- $\phi(\lambda)$ = Neutronenspektrum des Reaktors
- K(λ) = Transmissionsfunktion der Kollimatoren
- R(λ) = Reflektivität des Kristalls
- $\varepsilon(\lambda)$ = Nachweisempfindlichkeit des Detektors
- $\Delta\lambda$ = Auflösung des Spektrometers
- n = Ordnung der Reflexion

Diese Zählrate wurde als Funktion der Wellenlänge für verschiedene Kristalle mit dem beschriebenen Einkristall-Spektrometer aufgenommen. Alle Kristalle wurden im Reflexionsverfahren gemessen, diejenigen mit Dicken kleiner als 1 cm auch in Transmission.

Die Kristalle Pb(111) Nr. 11 ($F = 7 \times 14 \text{ cm}^2$) in Reflexion
und Cu(200) Nr. 5 ($F = 3 \times 4 \text{ cm}^2$) in Transmission

zeigten die größten Reflektivitäten und wurden deshalb als Monochromatoren für das Diffraktometer ausgewählt. Das Intensitätsmaximum beider Kristalle liegt bei $\lambda = 1,2 \text{ \AA}$. In Abb. 2-6 ist das Zählratenspektrum für den Monochromatorkristall Pb(111) Nr. 11 in Reflexionsstellung wiedergegeben. Der mittlere Fehler der Intensität ist kleiner als $\pm 0,8 \%$, die Auflösung des Spektrometers ist $\Delta\lambda = 15'$ entsprechend $\Delta\lambda = 0,025 \text{ \AA}$ für $\lambda \leq 1 \text{ \AA}$ (s. Abb. 2-5).

Dieses Spektrum zeigt Vertiefungen, die bei bestimmten Bragg-Winkeln auftreten und von doppelten oder mehrfachen Bragg-Reflexionen herrühren. Diese doppelten und mehrfachen Bragg-Reflexionen treten auf, wenn für eine bestimmte Wellenlänge eine zweite Netzebenenschar gleichzeitig der Bragg-Bedingung genügt, d.h. wenn im

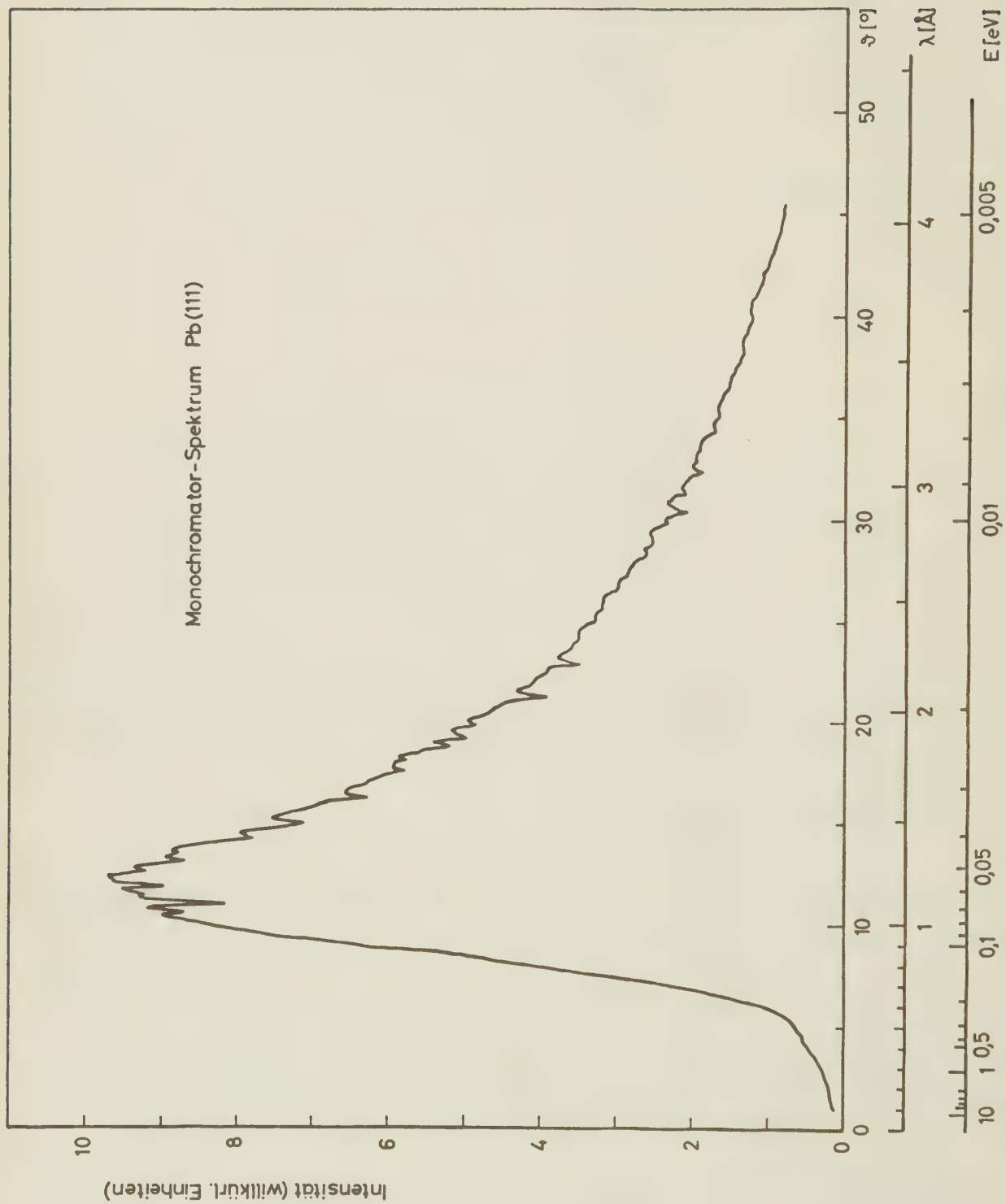


Abb. 2-6. Zählratenspektrum mit Pb(111)-Monochromator in Reflexion

reziproken Gitter zwei Gitterpunkte auf der Reflexionskugel, der Ewald-Kugel, liegen. Der an der zweiten Netzebene reflektierte Strahl läuft in eine andere Richtung als der erste reflektierte Strahl, dessen Intensität geschwächt wird. Bei mehrfachen Reflexionen kann der erste reflektierte Strahl wieder etwas verstärkt werden. In der Röntgentechnik sind diese Reflexionen als Umweganregungen, Aufhellungen oder Renninger-Linien bekannt.

Die Zuordnung der Vertiefungen in den gemessenen Zählratenspektren zu den entsprechenden Netzebenen (hkl) war nicht möglich, da nur die Orientierung von zwei kristallographischen Achsen der Monochromatorkristalle zum einfallenden Neutronenstrahl bekannt war.

In einer Reihe von Arbeiten /24-30/ wurden die parasitischen und mehrfachen Bragg-Reflexionen untersucht. Diese Effekte erschweren Intensitätsmessungen mit Kristallspektrometern als Funktion der Energie beträchtlich.

III. Diffraktometer

Einleitung

Das Diffraktometer besteht aus einem Monochromator mit Abschirmung, einem vollautomatischen 2-Kreis-Gerät und verschiedenen Versuchseinrichtungen (Kollimatoren, Goniometer, Detektoren, Meß- und Steuer-Elektronik, Zusatzapparaturen).

Ein Horizontal- und Vertikal-Schnitt, eine Daten-Skizze und eine Gesamtansicht der Beugungsanlage sind in den Abb. 3-1,2,3,4 dargestellt.

Für das Diffraktometer wurde das in Kapitel I beschriebene 2-Kreis-Gerät verwendet. Die sonstigen Versuchseinrichtungen werden in diesem Abschnitt beschrieben.

Eine Reihe von Diffraktometer-Beschreibungen/31-90/ sind im Literaturverzeichnis aufgeführt.

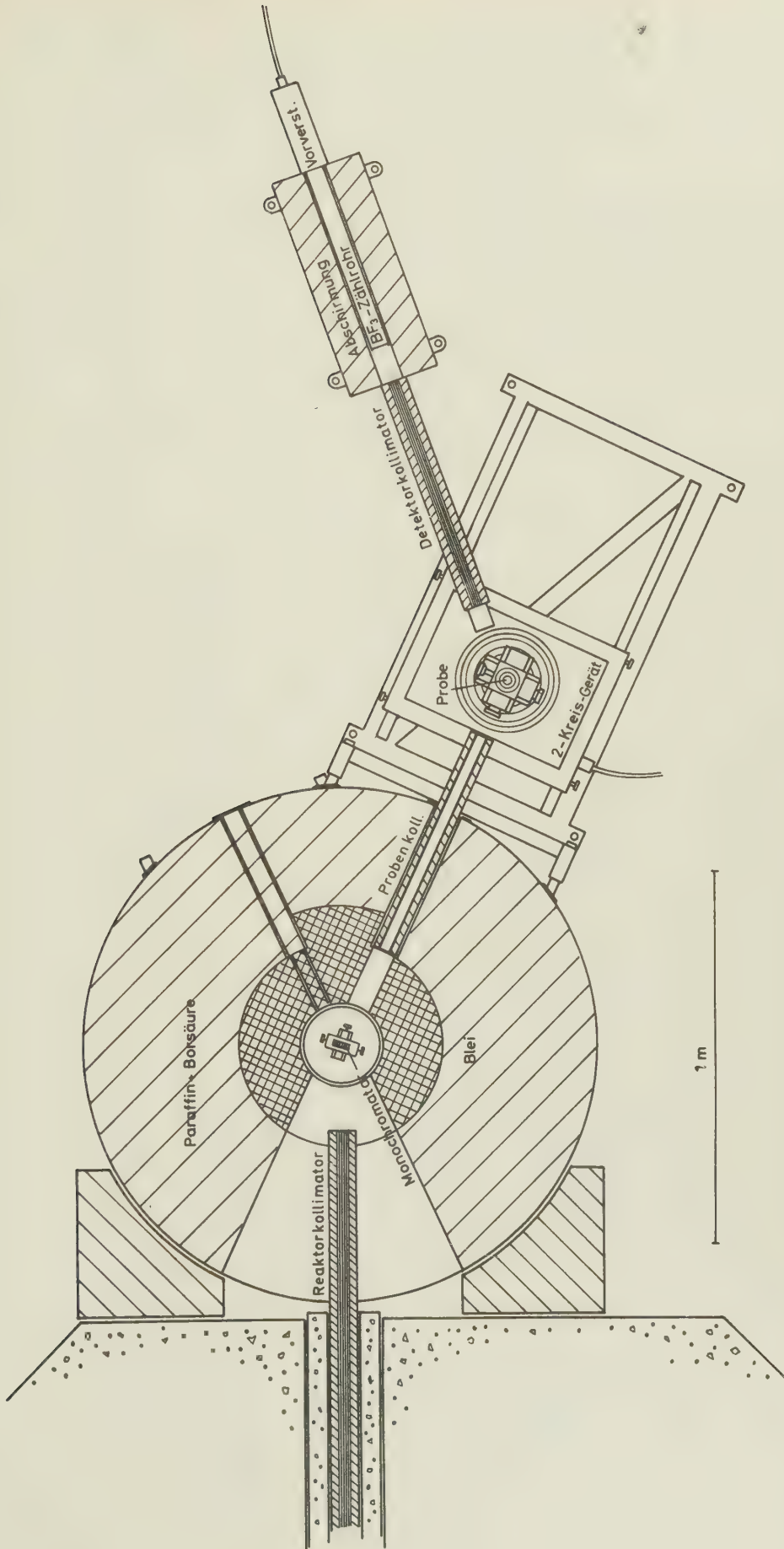


Abb. 3-1. Horizontalschnitt durch das Diffraktometer

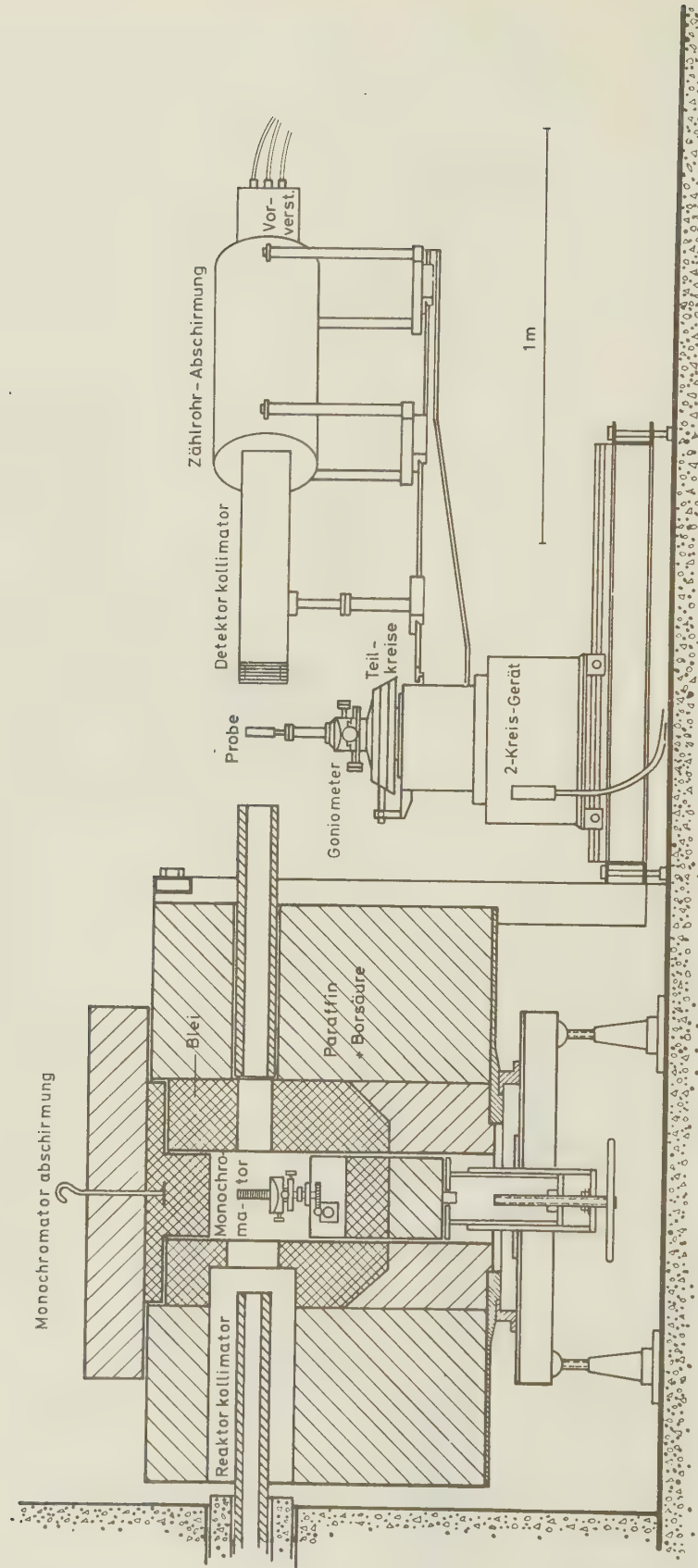


Abb. 3-2. Vertikalschnitt durch das Diffraktometer

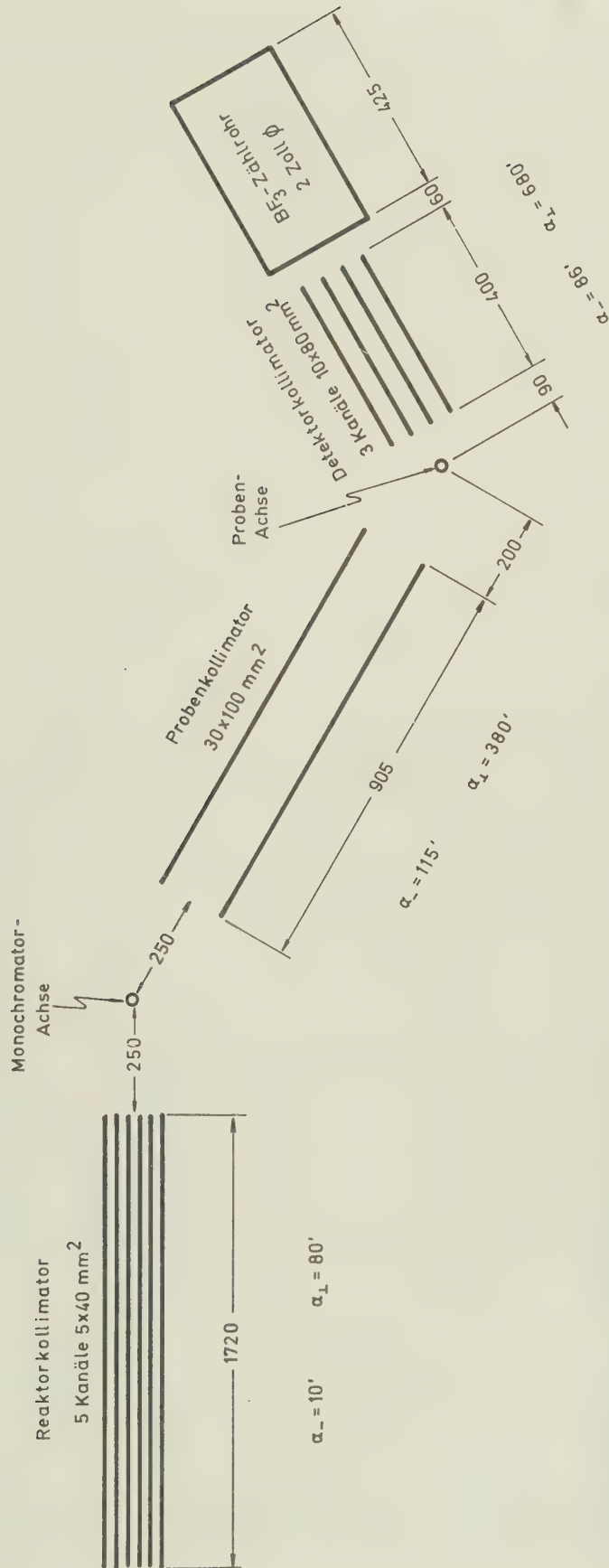


Abb. 3-3. Geometrische Daten des Diffraktometers, Maße in mm

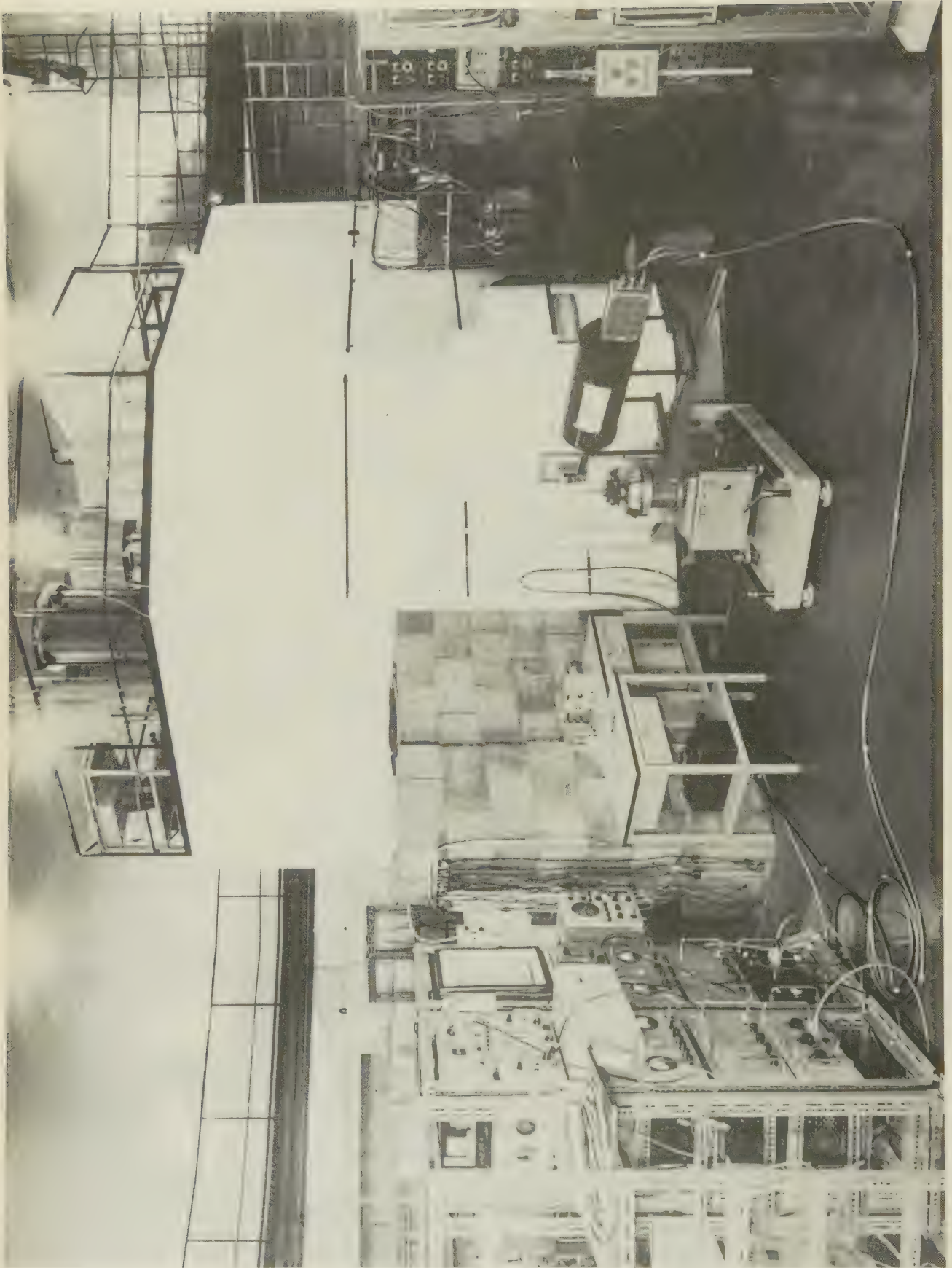


Abb. 3-4. Neutronendiffraktometer am FR-Frankfurt/M.

Kollimatoren

Das Auflösungsvermögen und die Transmission eines 2-Achsen-Diffraktometers werden hauptsächlich durch die verschiedenen Kollimatoren (Reaktor-, Proben- und Detektorkollimator) bestimmt.

Um hohe Neutronenintensitäten bei gleichbleibender Winkeldivergenz zu erhalten, werden Vielkanal-Kollimatoren, sogenannte Soller-Kollimatoren, benutzt. Dieser von Soller /91/ für die Röntgentechnik entwickelte Kollimatortyp wurde erstmalig von Hastings und Corliss /92/ bei einem Neutronenspektrometer verwendet.

Für den Bau von Soller-Kollimatoren wurden die verschiedensten Techniken und Konstruktionen entwickelt, vor allem bei Kollimatoren mit kleiner Winkeldivergenz. Die folgenden Arbeiten bringen eine ausführliche Beschreibung:

Sailor et al. /9/	($\alpha_{\text{hor.}}$ = 2', 1220 x 63,5 x 0,6 mm, 39 Kanäle, 0,05 mm Stahl-Lamellen)
Joki et al. /93/	($\alpha_{\text{hor.}}$ = 0,7', 1200 x 64 x 0,25 mm, 30 bzw. 40 Kanäle, 0,025 mm Nickel-Lamellen)
Caglioti und Casali /94/	($\alpha_{\text{hor.}}$ = 10', 360 x 40 x 1 mm, 22 Kanäle, 0,4 mm Gummi-Lamellen)

Zur Unterdrückung der Totalreflexion haben Joki et al. /93/ die Lamellen mit 1,5 μ Polyethylen beschichtet, Jones und Bartholini /95/ haben Laurinsäureäthylester verwendet.

Für das in dieser Arbeit beschriebene Diffraktometer wurden mehrere Kollimatoren gebaut, um die Kollimation den jeweiligen Bedingungen anpassen zu können.

Aus der vorgegebenen Strahlfläche und der horizontalen Winkeldivergenz errechnen sich die sonstigen Abmessungen der verschiedenen Kollimatoren. Die letztlich gewählten Daten ergeben sich aus dem Kompromiß zwischen Auflösung, Intensität, Konstruktion und praktischen Gesichtspunkten. Die Kenngrößen der konstruierten Kollimatoren sind in Tabelle II aufgeführt.

Tabelle II. Liste der Kollimatoren für das Diffraktometer
(Maße in mm)

	Abmessungen (mm)	Divergenzen $\alpha = d/l$		Anzahl der Kanäle	Lamellendick (mm)
	d x h x l	$\alpha_{\text{hor.}}$	$\alpha_{\text{vert.}}$	n	v
-Kollimatoren					
Reaktor-	5 x 40 x 1720	10'	1°20'	5	0,5
Proben-	4 x 80 x 800	17'	5°43'	9	0,3
	30 x 100 x 900	1°55'	6°20'	1	
	50 x 50 x 800	3°35'	3°35'	1	
	20 x 26 x 500	2°20'	3°	1	
Detektor-	5 x 80 x 590	29'	7°43'	10	0,3
	10 x 80 x 400	1°26'	11°18'	3	
	25 x 40 x 800	1°47'	2°52'	1	
	25 x 100 x 600	3° 7'	9°30'	1	

Alle Soller-Kollimatoren sind nach dem gleichen einfachen Prinzip, wie es die Abb.3-5 zeigt, aufgebaut. Als Lamellen werden gewalzte Nickel-Bänder verwendet, die Distanzstücke für die Lamellen und der Mantel des Kollimators sind aus Aluminium.

Bei der Konstruktion und dem Zusammenbau der Soller-Kollimatoren wurden keine besonderen Techniken angewandt, um die Lamellen unter Zug zu spannen.

Reaktor-Kollimator (s. Abb. 3-5)

Die Höhe der Kanäle des Reaktorkollimators von 40 mm wurde durch die Höhe des Monochromatorkristalles und des Detektors (BF_3 -Zählrohr mit 50 mm $\varnothing$), die gesamte Breite des Kanals durch den maximalen Durchmesser der verwendeten Probenbehälter bzw. die Breite der zu untersuchenden Einkristalle bestimmt.

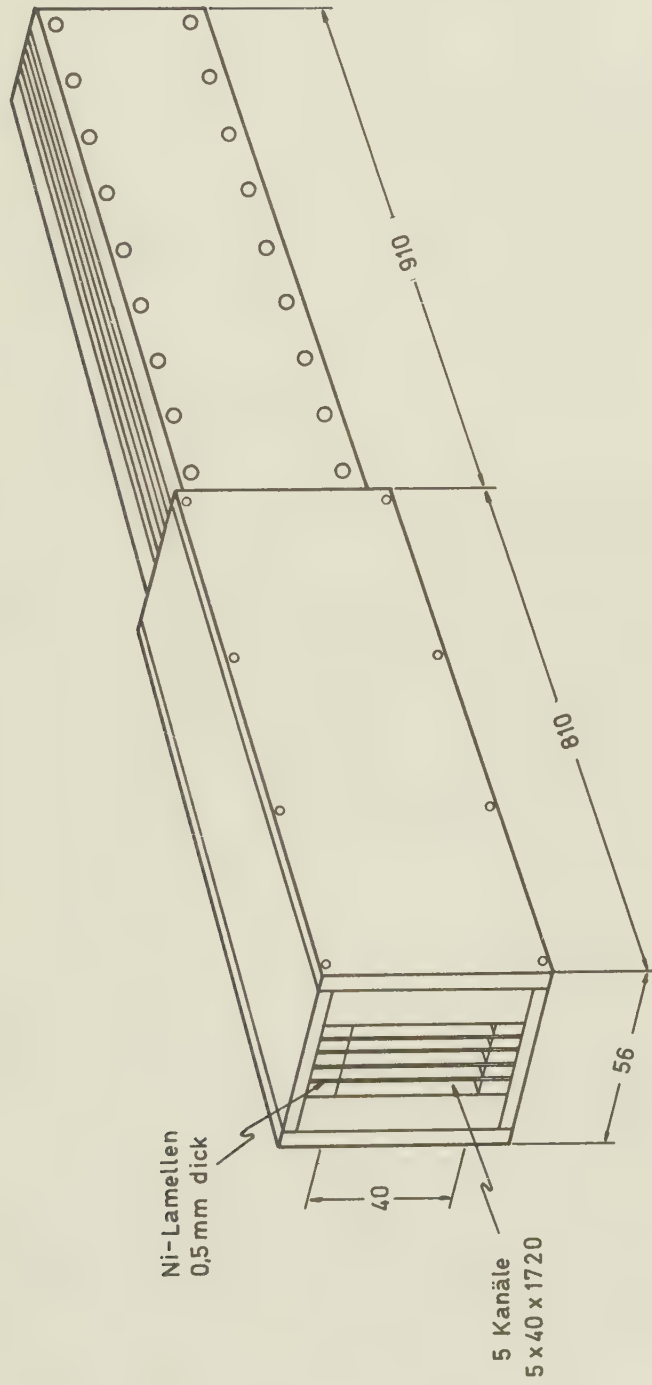


Abb. 3-5. Reaktorkollimator für das Diffraktometer
 $\alpha_{\text{hor.}} = 10'$, $\alpha_{\text{vert.}} = 1^{\circ}20'$, Maße in mm

Das äußere Ende des Kollimators ist von der strahlenden Fläche am Reaktor-Core 2960 mm entfernt. Berechnungen über die optimale Dimensionierung eines Reaktor-Kollimators wurden von Szabo /96-98/ und Jones /11,17/ veröffentlicht.

Nach der von Jones /17/ angegebenen Beziehung (A-4) erhält man am Ausgang der Kanäle dieses Reaktorkollimators eine Neutronenintensität von

$$\begin{aligned} J_{\text{kan.}} &= \frac{1}{4} d n \alpha \left[\frac{(e+h)^2}{L} + \frac{(e-h)^2}{L-l} \right] \frac{\phi_0}{4\pi} \\ &= 0,53 \cdot 10^{-4} \phi_0 \end{aligned} \quad (3-1)$$

- d = Breite der Soller-Kanäle
- n = Anzahl der Kanäle
- α = horizontale Winkeldivergenz des Kollimators
- e = Breite und Höhe des quadratischen Reaktorkanals
- h = Höhe des Kollimatorkanals
- L = Abstand Neutronenquelle - Kollimatorausgang
- l = Länge des Kollimators
- ϕ_0 = Neutronenfluß an der strahlenden Fläche

Dieser Kollimator entspricht nicht den optimalen Bedingungen; seine Transmission ist um 16 % kleiner als ein nach den Beziehungen von Jones /17/ errechnetes optimales System mit den Daten:

$$n_{\text{opt}} = 10, l_{\text{opt}} = 760 \text{ mm}, d_{\text{opt}} = 2,2 \text{ mm}.$$

Mit einem Neutronenfluß am Reaktor-Core von $\phi_0 = 3,38 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ nach Stelzer /122/ erhält man eine Neutronenintensität am Ende des Kollimators von

$$I_{\text{koll}} = 1,8 \cdot 10^7 \text{ n/sec}$$

Die Außenfläche des Reaktor-Kollimators ist in einer Stufe abgesetzt, um einen durchgehenden Spalt im Führungskanal des Kollimators zu vermeiden. Der Abschirm-Mantel wurde aus V2A-Blech geschweißt und mit Schwerbeton (83 Gew.% Magnetit, 8,8 Gew.% Zement, 3,35 Gew.% Borkalzit, 4,35 Gew.% Wasser) ausgefüllt.

Probenkollimatoren

Als Probenkollimatoren stehen ein Soller- und drei 1-Kanal-Kollimatoren mit großer horizontaler Winkeldivergenz zur Verfügung. Messungen mit verschiedenen Kombinationen der horizontalen Divergenzen des Proben- und des Detektor-Kollimators α_2 und α_3 haben in Übereinstimmung mit Sakamoto und Kunitomi /109/ ergeben, daß man bei Pulverreflexen größere Intensitäten bei praktisch gleichem Auflösungsvermögen erhält als bei einer Anordnung mit $\alpha_1 < \alpha_2 < \alpha_3$.

Die Probenkollimatoren bestehen auf der dem Monochromatorkristall zugewandten Seite aus einem 15 cm langen Bleistück, sonst aus Holz. Am anderen Ende befinden sich Führungsschlitze für 1 mm dicke Cd-Blenden zur Begrenzung des Neutronenstrahles für verschieden große Proben. Die Stirnflächen und Innenwände des Kanals sind mit 0,5 mm Cadmiumblech belegt. Die Probenkollimatoren lassen sich einfach und schnell auswechseln. Als Verschuß für den monochromatischen Strahl dienen 10 cm lange Bleistopfen mit 1 mm dicken Cd-Bleichen.

Detektorkollimatoren

Als Detektorkollimatoren stehen drei Soller-Kollimatoren mit verschiedenen Winkeldivergenzen zur Verfügung. Diese Kollimatoren lassen sich ebenfalls leicht auswechseln; dadurch kann man das Auflösungsvermögen des Diffraktometers in gewissen Grenzen schnell verändern. Diese Soller-Kollimatoren sind nach dem gleichen technischen Prinzip wie der Reaktor-Kollimator aufgebaut (s. Abb. 3-5). Sie haben auf beiden Enden verstellbare Cd-Blenden, so daß die Apertur jeweils der Probengröße entsprechend eingestellt und dadurch der Untergrund der aus der Umgebung gestreuten Neutronen möglichst klein gehalten werden kann.

Monochromator

Der monochromatische Neutronenstrahl für das Diffraktometer wird durch Bragg-Reflexionen an einem Einkristall erzeugt.

Als Monochromator-Kristalle wurden für dieses Diffraktometer zwei Kristalle ausgesucht: (s. Kap. II)

Pb(111) Nr. 11, $F = 7 \times 14 \text{ cm}^2$, $\theta = 23'$, in Reflexion
Cu(200) Nr. 5, $F = 3 \times 4 \text{ cm}^2$, $\theta = 13'$, in Transmission

Der Monochromator-Kristall ist auf einem Goniometer montiert. Dieses Goniometer besitzt zwei Drehachsen, eine vertikale für die Einstellung des Bragg-Winkels und eine horizontale Drehachse, um die Reflexionsebene senkrecht zu stellen. Der Drehpunkt der horizontalen Drehachse liegt 62 mm über dem Kristalltisch, der Drehwinkelbereich beträgt $\pm 25^\circ$. Die beiden Drehachsen werden von Servo-Motoren angetrieben. Außerdem besitzt das Goniometer einen Kreuzschlitten für zwei zueinander senkrechte Translationsbewegungen in der horizontalen Ebene. Damit kann man die vertikale Drehachse des Monochromatorkristalles verschieben.

Monochromatorabschirmung

Die Abschirmung wurde für Einkristallmessungen von König /124/ konstruiert und für dieses Diffraktometer umgebaut.

Der Monochromator-Kristall und das Goniometer sind von einer Abschirmung für γ -Strahlen und Neutronen umgeben. Der Monochromator-kristall befindet sich in der Mitte eines 15 cm dicken Bleigehäuses mit einem zylindrischen Innenraum von 20 cm Durchmesser und 30 cm Höhe. In Vorwärtsrichtung des Primärstrahles ist die Bleiwandung um 10 cm verstärkt. Zur Moderation schneller und Absorption langsamer Neutronen ist das Bleigehäuse von einer 40 cm dicken Schicht aus Paraffin und Borsäure (Mischungsverhältnis 80 : 20 Gew.%) umgeben. Der Innenraum der Abschirmung kann nach oben geöffnet werden. An beiden Seiten des Reaktor-Kollimators ist der freie Raum zwischen der Wand des Reaktors und der Abschirmtonne mit Formstücken aus Paraffin und Borsäure ausgefüllt.

In der horizontalen Strahlebene besitzt die Abschirmung zwei Kanäle für monochromatische Neutronen und einen sektorförmigen Einschubkanal mit einem Öffnungswinkel von 60° für den primären Strahl. Dadurch lassen sich Beugungswinkel der Monochromator-Kristalle bis zu 30° einstellen.

Die gesamte Abschirmung ist drehbar auf einem Rahmen gelagert, der sich durch Spindeln in der Höhe verstellen läßt. Da die Wellenlänge des monochromatischen Strahles selten verändert werden sollte, wurde auf eine 1:2-Kopplung zwischen den Drehbewegungen des Goniometers und der Abschirmung verzichtet. Die Einstellung einer bestimmten Wellenlänge für das Diffraktometer geschieht in der folgenden Weise:

Nachdem der berechnete, doppelte Reflexionswinkel für diese Wellenlänge zwischen der Richtung des Primärstrahles und der des Probenkollimators mit Hilfe einer groben Winkelskala, die am äußeren Radius der Abschirmtonne angebracht ist, eingestellt wurde, wird der Monochromator-Kristall mit dem Servo-Motor in die Position maximaler Intensität gedreht. Der Detektor steht

dabei in der Richtung $2\vartheta = 0$. Der genaue Wert der eingestellten Wellenlänge wird mit einem Analysator-Kristall auf dem Zwei-Achsen-Gerät bestimmt. Bei Abweichungen von der gewünschten Wellenlänge wird die Korrektur wieder auf dieselbe Weise vorgenommen.

An die Monochromator-Abschirmung ist ein Gestell mit Gleitschienen angeschraubt, auf dem die 1-Achsen-Beugungsanlage steht. Die Anlage läßt sich in Richtung des monochromatischen Strahles verschieben; dadurch kann der Abstand der Proben-Achse vom Monochromator-Kristall von 1 m auf 1,6 m und der Winkelbereich des Detektors von 125° auf 150° vergrößert werden. Senkrecht zum monochromatischen Strahl läßt sich die Apparatur um ± 1 cm verschieben, um die Proben-Achse in die Mitte des Neutronenstrahles einzustellieren zu können.

Detektoren

Bei dem Diffraktometer wird als Detektor für die thermischen Neutronen ein BF_3 -Proportional-Zählrohr der Firma 20th Century (Type 40 EB 70/50 G) verwendet. Die technischen Daten und die Betriebsdaten des Zählrohres sind: Durchmesser 2 Zoll, aktive Länge 40 cm, 96 % angereichertes B^{10} , Gasdruck 70 cm Hg, Betriebsspannung 3,6 kV, Gasvervielfachung etwa 70.

Die Intensität des Primärstrahles wurde mit einem BF_3 -Zählrohr als Monitor kontrolliert, das im Innenraum der Monochromator-Abschirmung Streustrahlung des Primärstrahles in Rückwärtsrichtung registrierte. Die Daten dieses Zählrohres sind: Fabrikat 20th Century, Type 5 B 40/13, Durchmesser 1,3 cm, aktive Länge 5 cm, natürliches Bor-Isotopengemisch (18,8 % B^{10}), Gasdruck 40 cm Hg, Betriebsspannung 1,2 kV, Gasvervielfachung etwa 30.

Detektorabschirmung

Die Abschirmung des Detektors besteht aus einem mehrwandigen Zylinder aus 1/2 mm Cadmium, 5 mm Borkarbid, 9 cm Paraffin; sie ist 60 cm lang und wiegt etwa 30 kg. Mit vier Justierschrauben kann sie auf dem Detektorarm in der Höhe und seitlich justiert werden.

Auch bei dieser Abschirmung wie bei der für das 1-Zoll-Zählrohr wurde der Ekco-Vorverstärker nicht in die Abschirmung mit eingebaut. Deshalb hat die Abschirmung in Rückwärtsrichtung eine Öffnung entsprechend einem Raumwinkel von etwa $2 \cdot 10^{-2}$ sterad, die für thermische Neutronen mit einer Cd-Scheibe verschlossen ist. Für die Hochspannungsdurchführung ist diese Cd-Scheibe mit einer Bohrung von 2 cm Durchmesser entsprechend einem Raumwinkel von etwa $3 \cdot 10^{-3}$ sterad versehen.

Aufbau und Justierung des Diffraktometers

Beim Justieren eines Diffraktometers einer 2-Achsen-Beugungsanlage gelten für jede Achse die gleichen Gesichtspunkte wie bei der Aufstellung eines Einkristall-Spektrometers mit einer Achse. Die Forderungen für das Justieren und die Justiermethode wurden in Kap. I ausführlich beschrieben.

Zusatzapparaturen

Für die Bestimmung des Debye-Waller-Koeffizienten in Abhängigkeit der Temperatur wurden ein Kryostat und eine Heizapparatur für die Pulver-Probe gebaut.

Der Kryostat (s. Abb. 3-6)

besteht aus fünf Einzel-Bauteilen aus Aluminium. Die Grundplatte, die äußere Wandung und das Gefäß für das Kältemittel werden im evakuierten Zustand in den Fassungen zusammengehalten. Ein Deckel mit einer Isolationsschicht schließt den Kryostaten ab. Der zylindrische Probenbehälter sitzt fest auf dem Stopfen am unteren Teil des inneren Gefäßes für das Kühlmittel. Das Pulver im Probenbehälter muß so hoch eingefüllt werden, daß es Kontakt mit der unteren Fläche des Stopfens hat.

Die Teile des Kryostaten, die vom Detektor "gesehen" werden, haben eine Wanddicke von 0,3 mm.

Als Kühlmittel können flüssige Luft oder Kältemischungen /125,126/ verwendet werden.

Das Volumen des Kühlmittel-Gefäßes beträgt nur 0,25 l; das bedeutet, daß im Abstand von zwei Stunden das Kühlmittel nachgefüllt werden muß. Für flüssige Luft als Kühlmittel wurde eine automatische Nachfüllapparatur benutzt.

Die Heizapparatur (s. Abb. 3-7)

besteht aus zwei Heizplatten, die am Boden und Deckel des Probenbehälters angeschraubt sind. Eine 0,02 mm dicke Aluminium-Folie ist als Reflektor um den Probenbehälter gelegt.

Die Temperatur wurde mit einem Eisen-Konstantan-Thermoelement in der Mitte der Pulverprobe gemessen und mit einem Steuergerät geregelt. Die Regelschwankungen betragen bei einer Temperatur von $T = 500^{\circ}\text{C}$ etwa $\pm 10^{\circ}\text{C}$.

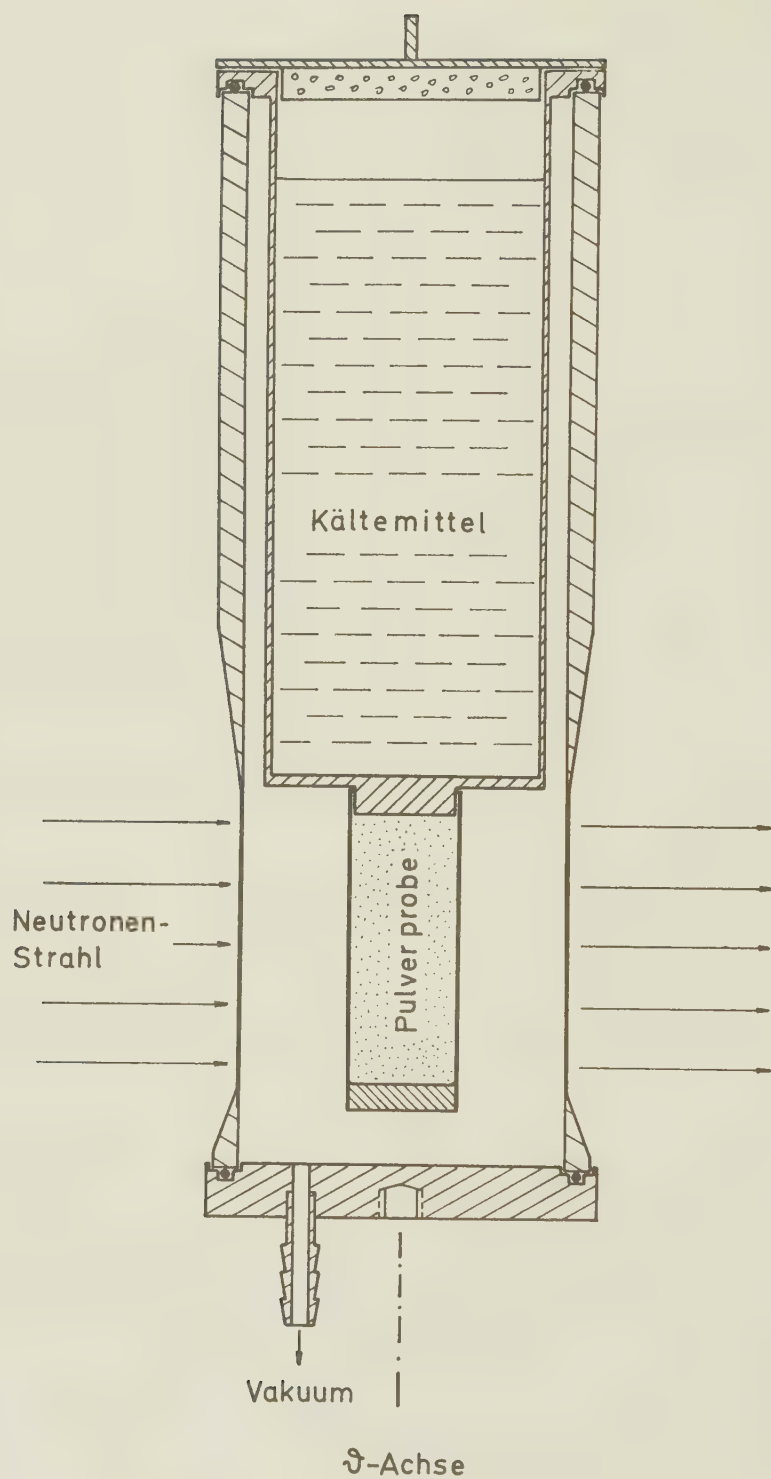


Abb. 3-6. Kryostat für Pulverprobe

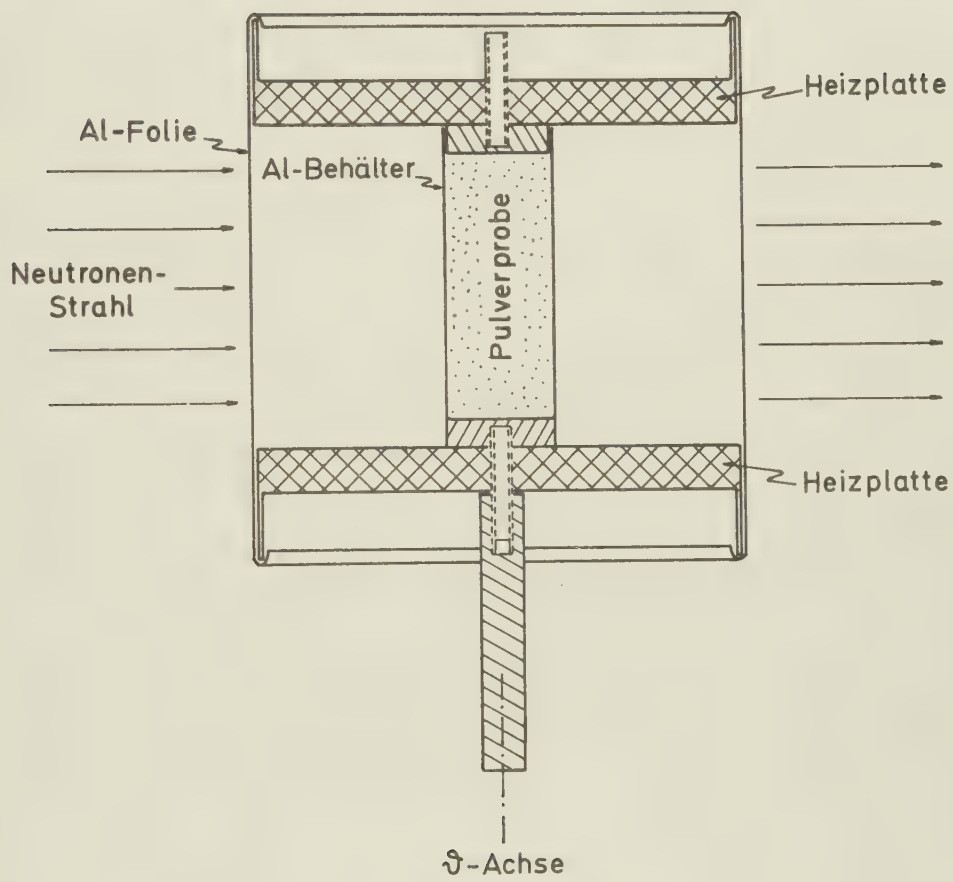


Abb. 3-7. Heizapparatur für Pulverprobe

IV. Voruntersuchungen mit dem Diffraktometer

Wellenlänge des monochromatischen Strahls

Für die Messungen mit dem Diffraktometer wurde eine Wellenlänge von $\lambda = 1 \text{ \AA}$ gewählt. Dieser Wert liegt in der Nähe des Maximums des Zählratenspektrums etwas zu kleineren Wellenlängen verschoben, so daß die Intensitäten der Anteile höherer Ordnungen klein bleiben.

Für die Netzebenen (200) des Kupfer-Monochromator-Kristalls wurde der Winkel zwischen dem Primärstrahl und dem Probenkollimator durch Drehen der Abschirmung auf $2\vartheta = 32,2^\circ$ eingestellt und der Monochromator in das Maximum der Intensität des Reflexes gedreht (s. Kap. III). Da die Einstellgenauigkeit des Winkels 2ϑ nicht sehr groß ist, wurde die Wellenlänge mit einem NaCl-Einkristall als Analysator und außerdem aus den Pulver-Reflexen des Diamants und Siliziums genau bestimmt.

Bei der Messung mit dem NaCl-Einkristall wurden im Transmissionsverfahren die Reflexe (200) links und rechts vom monochromatischen Neutronenstrahl in antiparalleler und paralleler Stellung aufgenommen. An die Meßwerte wurde nach der Methode der kleinsten Quadrate eine Gauß-Verteilung angepaßt und aus den Mittelwerten der Verteilungen die Winkelpositionen der Reflexmaxima bestimmt. Aus beiden Reflexen ergaben sich die Nullpunkts-Korrektur für die Teilkreise ϑ und 2ϑ des Diffraktometers und die Lage des NaCl-Reflexes (200) zu $\vartheta = 10^\circ 15,7' \pm 0,3'$.

Mit der Gitterkonstanten von NaCl ($T = 21^\circ\text{C}$) /127/

$$a = 5,62800 + 0,00050 \text{ \AA} \\ - 0,00087 \text{ \AA}$$

erhält man für die eingestellte Wellenlänge des Diffraktometers

$$\lambda = 1,00269 + 0,00050 \text{ \AA} \\ - 0,00052 \text{ \AA}$$

Eine Korrektur, die nach Gl. (4-1) die Brechung der Neutronen-Wellen berücksichtigt, ist von der Größenordnung 10^{-6} Å.

$$\lambda = 2d \sin \theta \left(1 - \frac{1-n}{\sin^2 \theta} \right) \quad (4-1)$$

n = Brechungsindex

Bei der Berechnung der Wellenlänge des monochromatischen Neutronenstrahles aus den Pulverdiagrammen des Diamants und des Siliziums wurden ebenfalls wie beim NaCl-Einkristall die Lagen der Reflexe und ihre Fehler aus den an die Meßwerte angepaßten Gaußkurven ermittelt. Als Gitterkonstanten wurden folgende Werte verwendet /127/:

Diamant $a = 3,55983 \begin{smallmatrix} + 0,00016 \\ - 0,00042 \end{smallmatrix}$ bei 21° C

Silizium $a = 5,41948 \pm 0,00043$ bei 20° C

Es zeigt sich, daß die berechneten Wellenlängen mit abnehmendem Bragg-Winkel des Pulverreflexes kleiner werden (s. Abb. 4-1). Dieser Effekt kommt von der Verschiebung des Linienschwerpunktes der Reflexe zu kleinen Bragg-Winkeln durch die Krümmung der Debye-Ringe; er ist besonders groß bei kleinen Bragg-Winkel und bei großer vertikaler Divergenz des Neutronenstrahles. Nach der Theorie von Pike /128/ ist die Linienverschiebung $\Delta \theta = 0$ für $2\theta = 120^\circ$. Die Abb. 4-2 zeigt die experimentellen Werte und die nach Pike berechneten Verschiebungen für die geometrische Anordnung dieses Diffraktometers.

Die Abweichungen der experimentellen von den berechneten Werten bei kleinen Winkeln ist ungeklärt.

Für die weiteren Rechnungen wurde der Wert der Wellenlänge bei $2\theta = 120^\circ$ verwendet, bei dem keine Linienverschiebung auftritt:

$$\lambda = 1,00435 \begin{smallmatrix} + 0,00008 \text{ Å} \\ - 0,00014 \text{ Å} \end{smallmatrix}$$

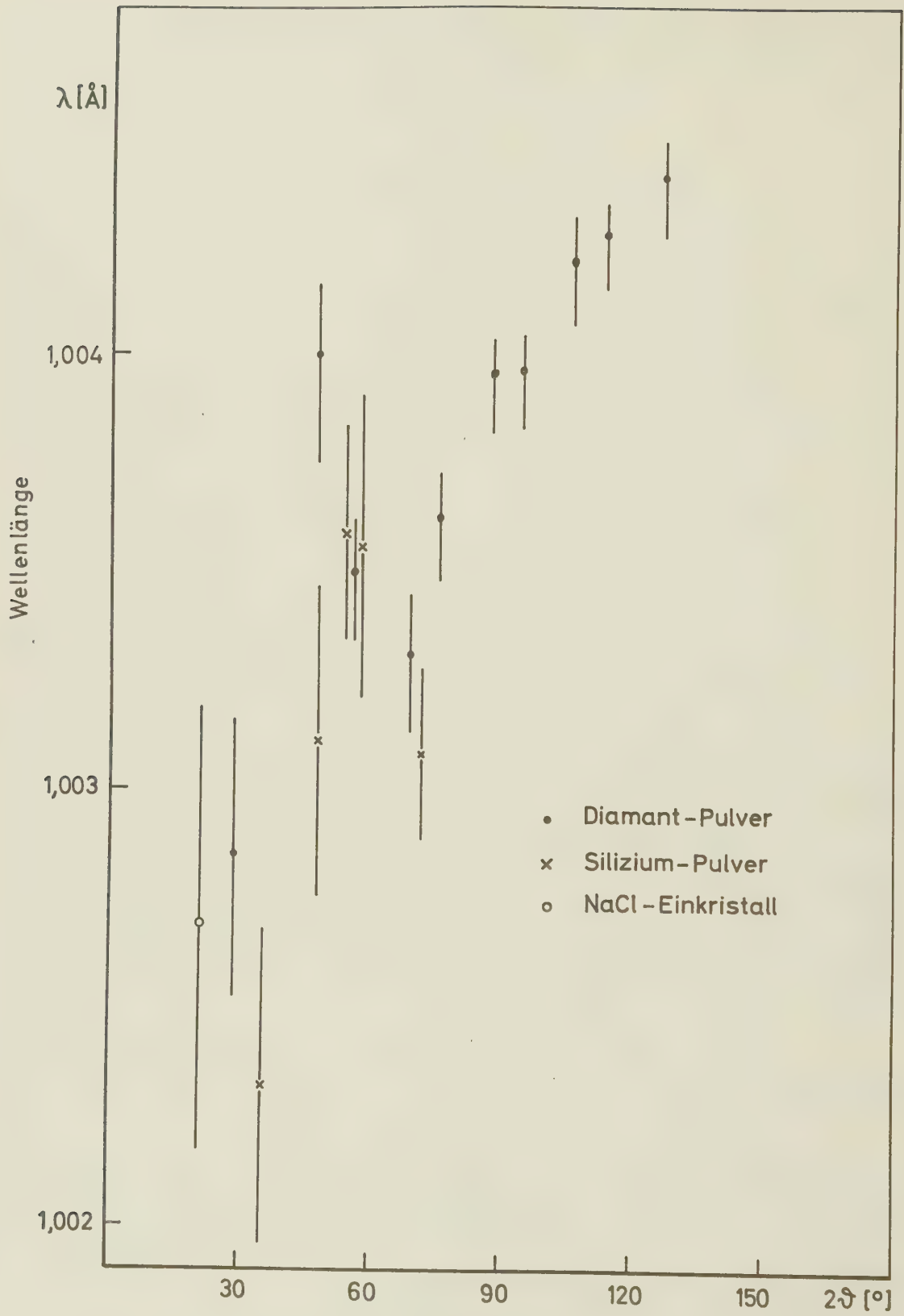


Abb. 4-1. Wellenlänge des monochromatischen Neutronenstrahles, berechnet aus der Lage von Reflexen

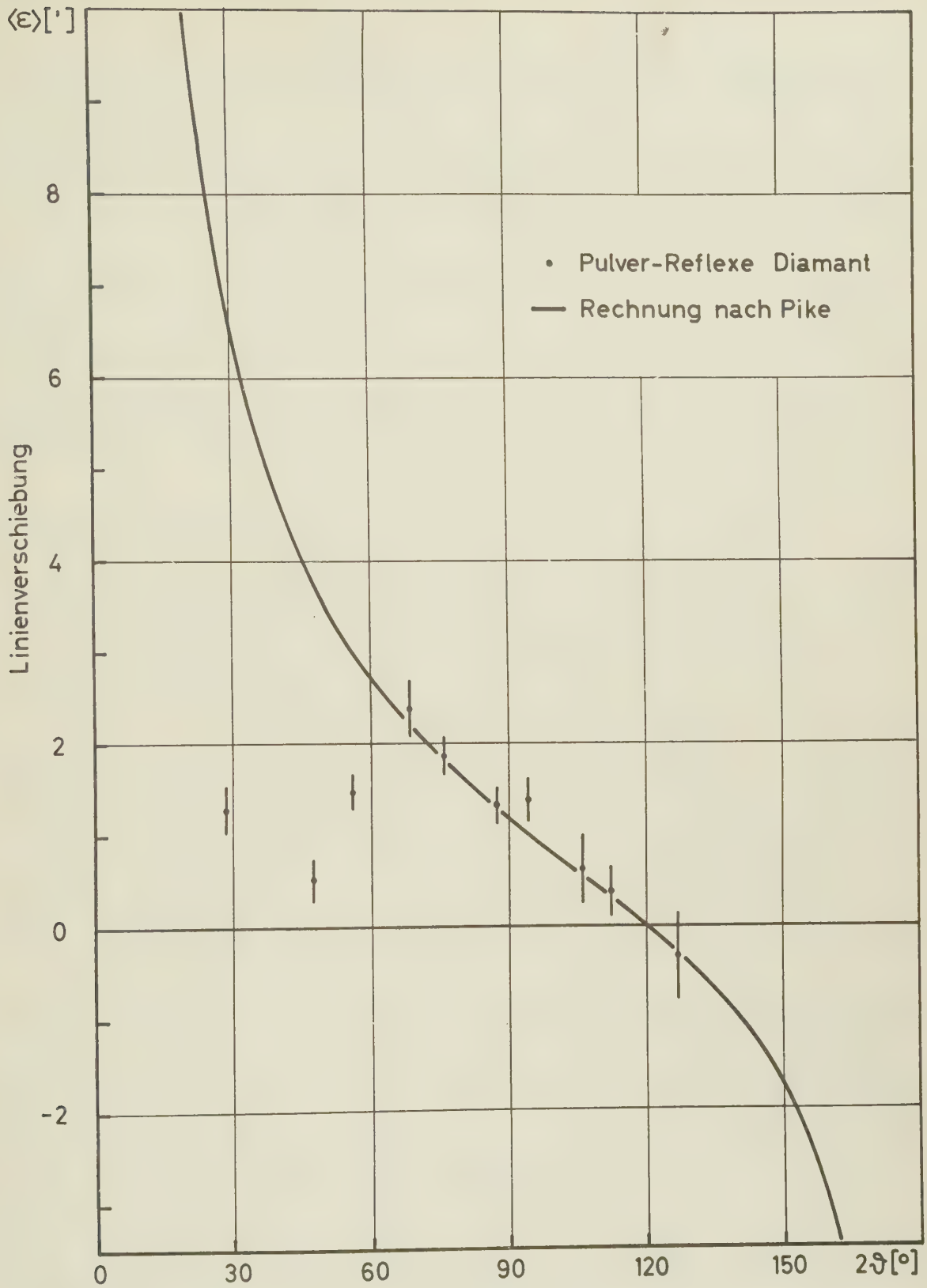


Abb. 4-2. Linierverschiebung der Pulver-Reflexe von Diamant

Bandbreite des monochromatischen Strahles

Die Bandbreite des monochromatischen Neutronen-Strahles ergibt sich aus dem Auflösungsvermögen der Monochromator-Einheit des Diffraktometers nach der Gleichung (2-13).

Mit den folgenden Daten: Monochromator Cu(200) Nr. 5, $\beta = 13^\circ$

$$\alpha_1 = 10^\circ$$

$$\alpha_2 = 115^\circ$$

erhält man für das Winkelauflösungsvermögen des Monochromators nach Gleichung (2-26) $A_{1/2} = 16'$ und für die Größe k , der apparativen Konstanten nach Gleichung (2-21)

$$k = \frac{2d}{n} \cdot A_{1/2} = 0,0168 \text{ \AA}$$

Die Wellenlängenbandbreite des Monochromators Cu(200) bei $\lambda = 1,00435 \text{ \AA}$ beträgt somit

$$\Delta\lambda = k \cdot \cos \beta = 0,0161 \text{ \AA}$$

Höhere Ordnungen

Der vom Monochromatorkristall reflektierte und auf die Streuprobe auftreffende Neutronenstrahl enthält außer der Wellenlänge durch Reflexionen höherer Ordnung Neutronen mit den Wellenlängen $\lambda/2$, $\lambda/3$, $\lambda/4$ usw. Es soll hier nur der Anteil von Neutronen mit der Wellenlänge $\lambda/2$ im monochromatischen Strahl ermittelt werden; höhere Ordnungen wie $\lambda/3$ -, $\lambda/4$ -Anteile usw. sind bei der eingestellten Wellenlänge von $\lambda = 1,00435 \text{ \AA}$ intensitätsschwach, da zu kleinen Wellenlängen hin die Intensität des Neutronenspektrums vom Reaktor und die Reflektivität der Kristalle stark abnehmen.

Zur experimentellen Bestimmung der Intensitäten höherer Ordnungen lassen sich zwei Methoden anwenden:

1. Die Transmissionsmessung mit Absorbern mit bekanntem Wirkungsquerschnitt (Sturm /129/).
2. Die Spektrometrie mit einem Einkristall bekannter relativer Reflektivität.

In dieser Arbeit wurde nach der zweiten Methode der "monochromatische" Neutronenstrahl mit einem NaCl-Kristall mit der Netzebene (200) im Transmissionsverfahren spektrometriert, d.h. die Zählraten der Anteile mit den Wellenlängen $\lambda = 1,00435 \text{ \AA}$ und $\lambda/2 = 0,50218 \text{ \AA}$ bei den Bragg-Winkeln $\vartheta_1 = 10^\circ 15,7'$ und $\vartheta_2 = 5^\circ 6,6'$ gemessen.

Für die im Detektor registrierte Zählrate im Wellenlängenbereich λ und $\lambda + \Delta\lambda$ gilt die Gleichung (2-30), wobei nur Reflexionen erster Ordnung mit $n = 1$ im Analysatorkristall berücksichtigt werden.

$$Z(\lambda) = F \phi(\lambda) K(\lambda) R(\lambda) \varepsilon(\lambda) \Delta\lambda \quad (4-2)$$

$\phi(\lambda)$ bedeutet hier das Spektrum des "monochromatischen Neutronenstrahles" mit den Wellenlängen λ und $\lambda/2$.

Der Einfluß der Transmissionsfunktion $K(\lambda)$, die die Veränderung des Spektrums der Neutronen durch Absorption und Streuung in der Luft und durch Totalreflexion an den Kollimatorwänden beschreibt, ist hier vernachlässigbar klein. Der Grenzwinkel der Totalreflexion an den Nickel-Lamellen des Soller-Kollimators für $\lambda = 1 \text{ \AA}$ mit $\lambda_c = 5,9'$ ist klein gegenüber der Kollimatordivergenz von $\alpha = 86'$.

Die integrierte Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda)$ für NaCl(200) ist von Holm /130/ als Funktion vom Bragg-Winkel λ berechnet worden. Mit der Beziehung $\mathcal{R}(\lambda) = \mathcal{R}(\lambda) 2d \cos \lambda$ /131/ läßt sich die in der obigen Gleichung benutzte Größe umschreiben.

Die Detektornachweiswahrscheinlichkeit ε als Funktion der Energie für einen Neutronenstrahl, der in Längsrichtung eines BF_3 -Zählrohres einfällt, ist:

$$\varepsilon = \exp - \left(n_W \sigma_W x_W + n_B \sigma_B x_i \right) \left[1 - \exp(-n_B \sigma_B x_a) \right] \quad (4-3)$$

n = Zahl der Atome/cm³

σ = Absorptions-Wirkungsquerschnitt

x = Dicke der Absorberschicht

Indizes W = Wand

B = B¹⁰

i = inaktive Zone

a = aktive Zone

Nach dieser Gleichung wurde die Nachweiswahrscheinlichkeit für die in dieser Arbeit verwendeten Zählrohre der Firma 20th Century berechnet.

Type	Ø	Wandung Stirnfläche	Anreicherung	Druck	x_i	x_a
31 EB 70	1 Zoll	0,8 mm Cu	96 %	700 Torr	1,7 cm	31 cm
40 EB 70	2 Zoll	0,8 mm Cu	96 %	700 Torr	2,5 cm	40 cm

Dabei sind sämtliche Streuprozesse und die Absorption von Neutronen durch die restlichen Gaskomponenten vernachlässigt. Für diese Zählrohre sind die Nachweiswahrscheinlichkeiten in Abb. 4-3 wiedergegeben.

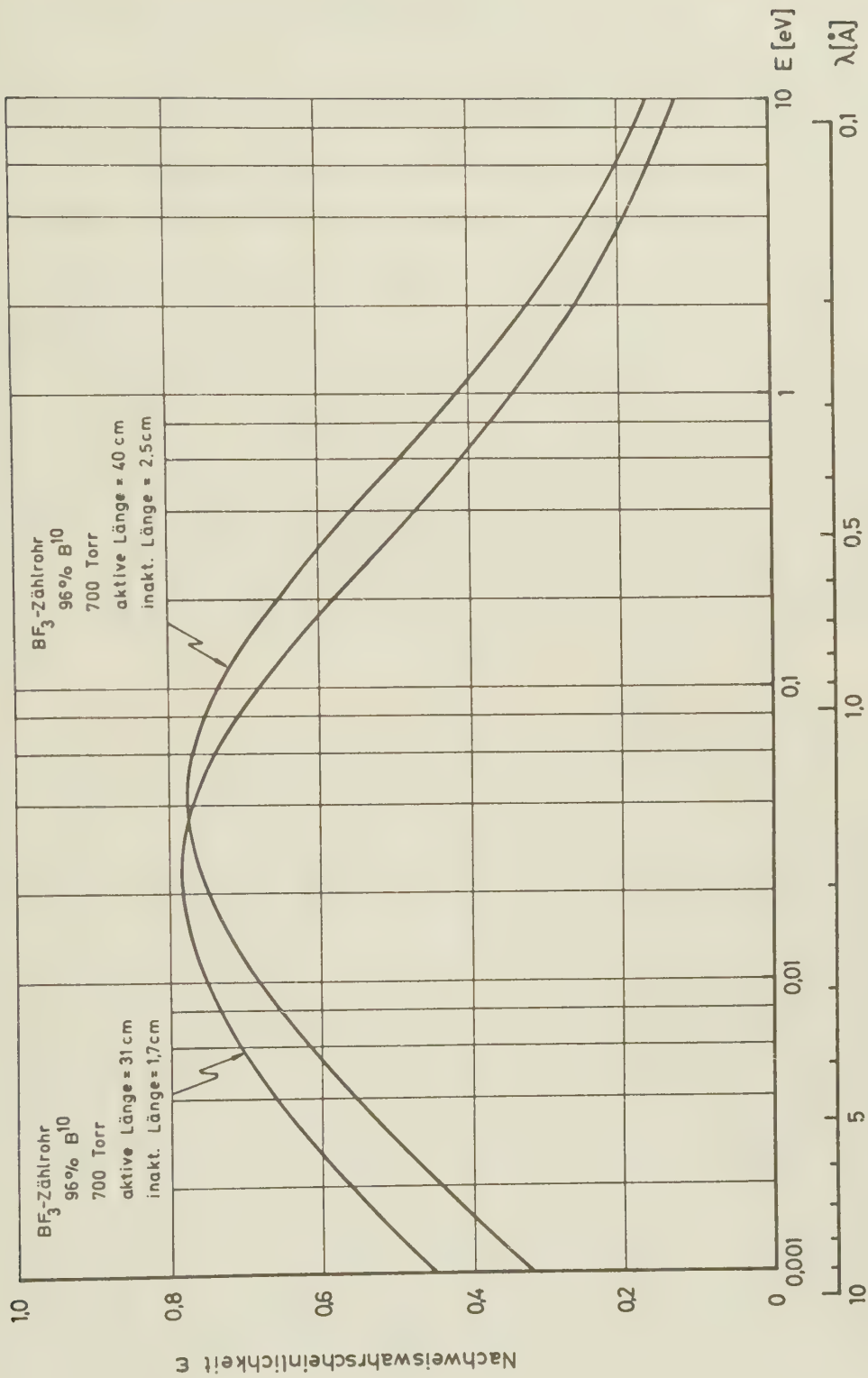


Abb. 4-3. Nachweiswahrscheinlichkeit von BF₃-Zählrohren
(20th Century, Typen 31EB70 und 40EB70)
für achsial einfallenden Neutronenstrahl

Ermittelt man die einzelnen Faktoren der Gleichung (4-2) für die beiden Wellenlängen λ und $\lambda/2$, so erhält man für das Verhältnis der Neutronenflüsse der 2. zur 1. Ordnung

$$\phi(\lambda/2) / \phi(\lambda) = 3,2 \, \%$$

Das Pulverdiagramm, das zu der Wellenlänge $\lambda/2$ der 2. Ordnung des monochromatischen Strahles gehört, liegt zu kleinen Winkeln θ hin verschoben. Das Verhältnis der Zählraten der Reflexe 2. zur 1. Ordnung ist kleiner als das berechnete Verhältnis der Neutronenflüsse, da Neutronen der Wellenlänge $\lambda/2 = 0,5 \text{ \AA}$ verglichen mit Neutronen der Wellenlänge $\lambda = 1 \text{ \AA}$ vom Zählrohr nur mit 78 % Wahrscheinlichkeit gezählt werden. Außerdem ist noch die Reflektivität der Pulverprobe bei der Wellenlänge $\lambda/2$ kleiner, so daß man das Zählratenverhältnis mit $I(\lambda/2) / I(\lambda) < 2,5 \, \%$ angeben kann.

Auflösungsvermögen des Diffraktometers

Das Winkelauflösungsvermögen eines Pulverdiffraktometers wird von den Divergenzen des Reaktor-, Proben-, und Detektor-Kollimators und der Halbwertsbreite der Mosaikverteilung des Monochromator-kristalls bestimmt.

In einer Reihe theoretischer und experimenteller Arbeiten werden Probleme untersucht, die bei der Kollimation thermischer Neutronen für die verschiedensten Spektrometertypen (1-, 2-, 3-Achsen-Spektrometer) auftreten.

Einkristall-Diffraktometer mit drei Kollimatoren wurden von Caglioti et al. /100-102/, Willis /103,104/, Dachs /105/ untersucht. Sabine und Brown /106/ zeigen, daß die Auflösung eines Diffraktometers vom Verhältnis der Kollimatorabstände bestimmt wird.

In folgenden Arbeiten werden Pulver-Diffraktometer mit drei Kollimatoren untersucht:

Caglioti et al. /107/ und Popovici /108/ berechnen optimale Bedingungen für die Auflösung und Transmission, wenn die Divergenzen des Reaktor-, Proben- und Detektor- bzw. des 1., 2. und 3. Kollimators der Ungleichung $\alpha_1 < \alpha_2 < \alpha_3$ genügen. Die Effekte der Totalreflexion und der Sekundärextinktion berücksichtigen sie nicht. Sakamoto und Komitoni /109/ finden jedoch experimentell für die Kollimator-Divergenzen die Beziehung $\alpha_1 < \alpha_2 > \alpha_3$. Bei den Berechnungen der Transmission eines Pulver-Diffraktometers von Popovici und Gelberg /21/ wird der Einfluß der sekundären Extinktion mitberücksichtigt. Den Einfluß der Totalreflexion an den Kollimator-Lamellen auf Pulver-Reflexe zeigen Hase und Kleinstück /110/. Das Auflösungsvermögen von Pulver-Diffraktometern wurde experimentell unter anderem von Atoji /111/ und Caglioti /101/ untersucht.

Transmission und Auflösung von 3-Achsen-Spektrometern hängen von der Art des Streuers ab. Die Optik eines solchen Spektrometers wurde für inelastische Neutronen-Streuung durch Phononen von Stockmeyer /112/, für elastische Streuung von Caglioti und Tocchetti /113/ und elastische isotrope Streuung wie z.B. für Flüssigkeiten und Gase von Popovici und Gelberg /21 untersucht.

Um möglichst große Intensitäten der Reflexe zu erhalten, wurden die Divergenzen des Proben- und des Detektor-Kollimators - diese Kollimatoren sind am einfachsten auszuwechseln - so gewählt, daß die Reflexe des Diamanten bis zum Reflex (620) gerade noch aufgelöst werden.

Mit den Daten $\alpha_1 = 10'$
 $\alpha_2 = 115'$
 $\alpha_3 = 86'$
 $\beta = 13'$

wurde die Halbwertsbreite der Pulverreflexe nach Caglioti et al./107/ als Funktion von 2θ berechnet. Dieses theoretische Auflösungsvermögen und die gemessenen Halbwertsbreiten der Reflexe von Diamant und Silizium sind in Abb. 4-4 wiedergegeben. Die Fehler der experimentellen Werte liegen bei den meisten Daten innerhalb der Zeichengenauigkeit. Man sieht, daß die experimentellen Werte bei großen Bragg-Winkeln sehr gut mit der berechneten Kurve übereinstimmen, zu kleinen Winkeln hin etwas darüber liegen. Diese Zunahme der Halbwertsbreite zu kleinen Bragg-Winkeln erklärt sich aus der Linienasymmetrie durch die vertikale Divergenz der Neutronenstrahlen.

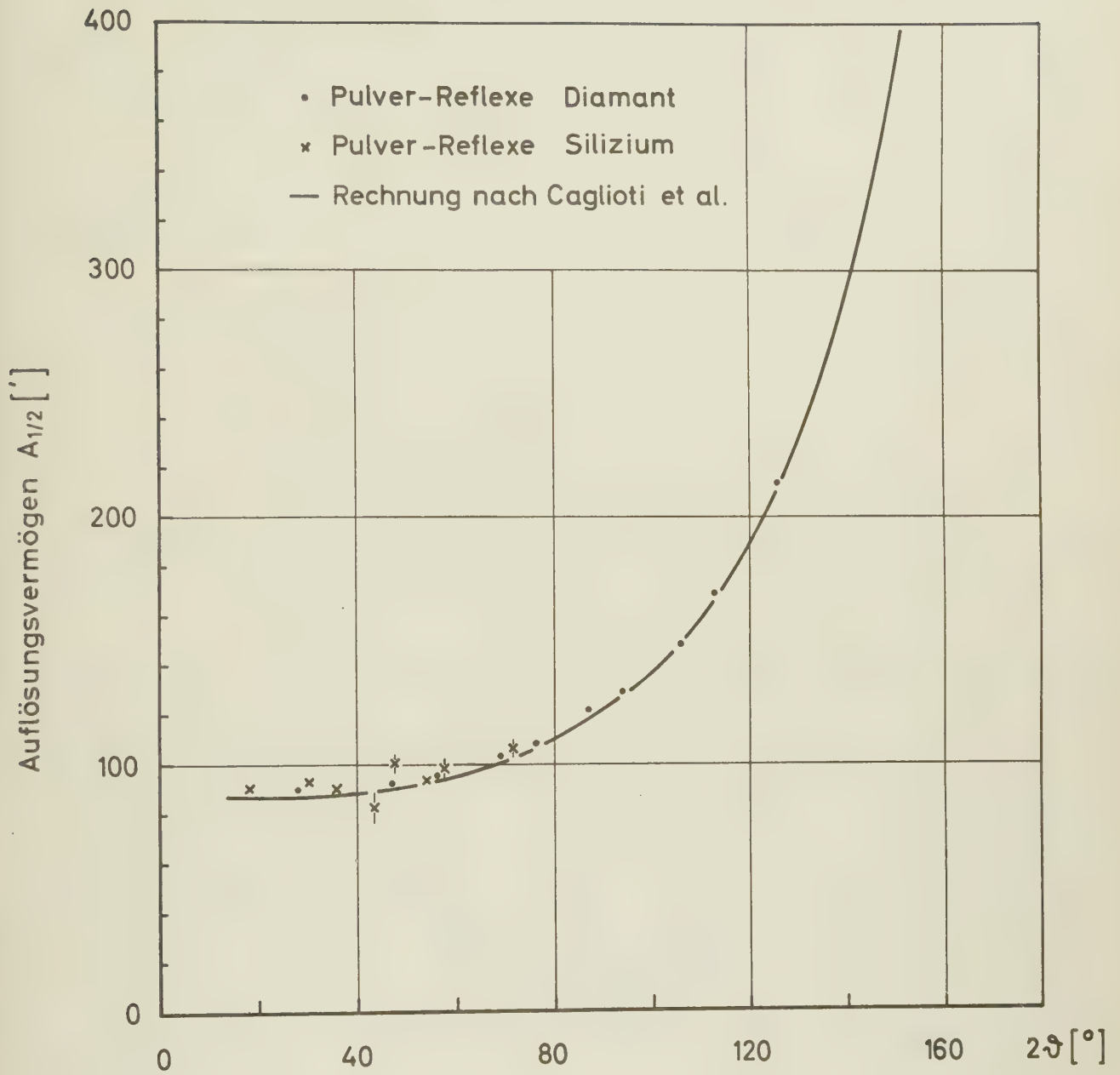


Abb. 4-4. Auflösungsvermögen des Pulver-Diffraktometers

V. Messung der Debye-Waller-Koeffizienten von Diamant und Silizium

Debye-Waller-Koeffizienten bei konstanter Temperatur

Die Intensität eines Pulver-Reflexes τ einer zylindrischen Streuprobe der Temperatur T ist nach Bacon /131/ gegeben durch die Beziehung

$$I_{\tau} = I_0 N^2 \frac{l}{8\pi\lambda} V \frac{\rho'}{\rho} \lambda^3 \frac{1}{2 \sin^2 \vartheta_T \cos \vartheta_T} A_{\tau} j_{\tau} |F'_{\tau}|^2 e^{-2W_T \sin^2 \vartheta / \lambda^2} \quad (5-1)$$

I_0 = Intensität des monochromatischen Strahles

N = Zahl der Einheitszellen/cm³

l = Höhe der Detektor-Blende

r = Abstand Präparat - Detektor

V = bestrahltes Präparat-Volumen

ρ' = Dichte des Kristall-Pulvers

ρ = Dichte des Kristalles

λ = Wellenlänge der Neutronen

ϑ = Reflexionswinkel

A_{τ} = Absorptionskorrekturfaktor

j_{τ} = Multiplizität

F'_{τ} = Strukturfaktor = $\sum_j b_j \exp \{ 2\pi i (h x_j + k y_j + l z_j) \}$

b_j = kohärente Streuamplitude

j = Atome/Einheitszelle

W_T = Debye-Waller-Koeffizient

τ = Betrag des reziproken Gittervektors

T = Temperatur der Streuprobe

Die Intensität elastisch kohärent gestreuter Neutronen wird also um den Temperaturfaktor $\exp (-2W_T \sin^2 \vartheta / \lambda^2)$, den sogenannten Debye-Waller-Koeffizienten geschwächt, er hängt von der Temperatur T der Streusubstanz und vom Beugungswinkel ϑ ab. Der Debye-Waller-Koeffizient W_T ist eine für jede Substanz charakteristische Größe.

Der Reflexionswinkel λ läßt sich aus der Gleichung (5-1) eliminieren und mit der Beziehung

$$\tau_T = \tau/\gamma \quad (5-2)$$

$$\gamma = a_T/a = 1 + \alpha(T-T_0)$$

a_T = Gitterkonstante bei der Temperatur T

α = linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient

erhält man

$$I_T = \underbrace{I_0 N^2 \frac{l}{8\pi\lambda} V \frac{f'}{f}}_C \underbrace{A_{\tau} j_{\tau} |F'_{\tau}|^2}_{S_{\tau}} \frac{1}{(\tau_T/2)^2 [1 - \lambda^2 (\tau_T/2)^2]^{\frac{1}{2}}} e^{-2W_T (\tau_T/2)^2} \quad (5-3)$$

C apparative konstante
 S_{τ} von Kristall abhängige konstante

$$\ln I_T \underbrace{\frac{(\tau_T/2)^2 [1 - \lambda^2 (\tau_T/2)^2]^{\frac{1}{2}}}{C S_{\tau}}}_{R_T} = -2W_T (\tau_T/2)^2 \quad (5-4)$$

Nach Gl. (5-3) läßt sich der Debye-Waller-Koeffizient W_T für jeden Reflex τ durch eine Absolutmessung ermitteln.

Ist jedoch der Debye-Waller-Koeffizient für alle Reflexe gleich groß, so läßt er sich für konstante Temperatur durch eine Relativmessung aus dem Anstieg der Geraden $\ln I_T R_T = -2W_T (\tau/2)^2$ bestimmen (s. Abb. 5-3,4), d.h. aus den bei einer Temperatur gemessenen relativen Intensitäten mehrerer Reflexe.

Salter /132/ zeigt, daß sich der Exponent des Debye-Waller-Faktors

$$Q_{\alpha} Q_{\beta} \langle u_{\alpha} u_{\beta} \rangle$$

$$\vec{Q} = \vec{k}_0 - \vec{k} = \text{Vektor der Impulsübertragung}$$

$$\vec{k}_0, \vec{k} = \text{Wellenvektoren der einfallenden}$$

bzw. gestreuten Neutronen

$$\vec{Q} = 2\pi \vec{\tau} \quad \text{für kohärente elastische Streuung}$$

$$\vec{u} = \text{Vektor der Auslenkung des Atoms aus der Gleichgewichtslage}$$

$$\alpha, \beta = \text{kartesische Komponenten } x, y, z$$

im Rahmen der harmonischen Gitterdynamik für Kristalle mit kubischer Symmetrie beträchtlich vereinfacht zu

$$Q^2 \langle u_\tau^2 \rangle = 16 \pi^2 (\tau/2)^2 \langle u_\tau^2 \rangle$$

wobei u_τ eine Komponente des Vektors $\vec{u}$ in einer beliebigen Richtung bedeutet. Daraus folgt, daß der Debye-Waller-Koeffizient $W_T = 8\pi^2 \langle u_\tau^2 \rangle$ für kubische Bravais-Gitter dem mittleren Auslenungsquadrat proportional und für alle Reflexe gleich groß ist.

Wie später gezeigt wird, gilt dies auch für die zweiatomigen Gitter Diamant und Silizium.

Mit dem beschriebenen Diffraktometer wurden die Pulverreflexe von Diamant bis zum Reflex (620) und von Silizium bis zu (531) bei Zimmertemperatur aufgenommen. Die Pulverdiagramme dieser Substanzen bis zu $2\theta = 140^\circ$ sind in Abb. 4-5 dargestellt. An die Meßwerte jedes Reflexes wurde nach der Methode der kleinsten Quadrate eine Gauß-Verteilung angepaßt (s. Abb. 5-2), aus der die Fläche, die Lage des Maximums, die Halbwertsbreite, der Untergrund und die Fehler dieser Größen berechnet wurden.

Die Intensitäten der Pulverreflexe von Diamant und Silizium bei Zimmertemperatur sind in den Abb. 5-3 und 5-4 wiedergegeben. Die Debye-Waller-Koeffizienten $W_0(C)$ und $W_0(Si)$ wurden aus den Anstiegen der Geraden bestimmt, die nach der Methode der kleinsten Quadrate an die Meßdaten angepaßt wurden.

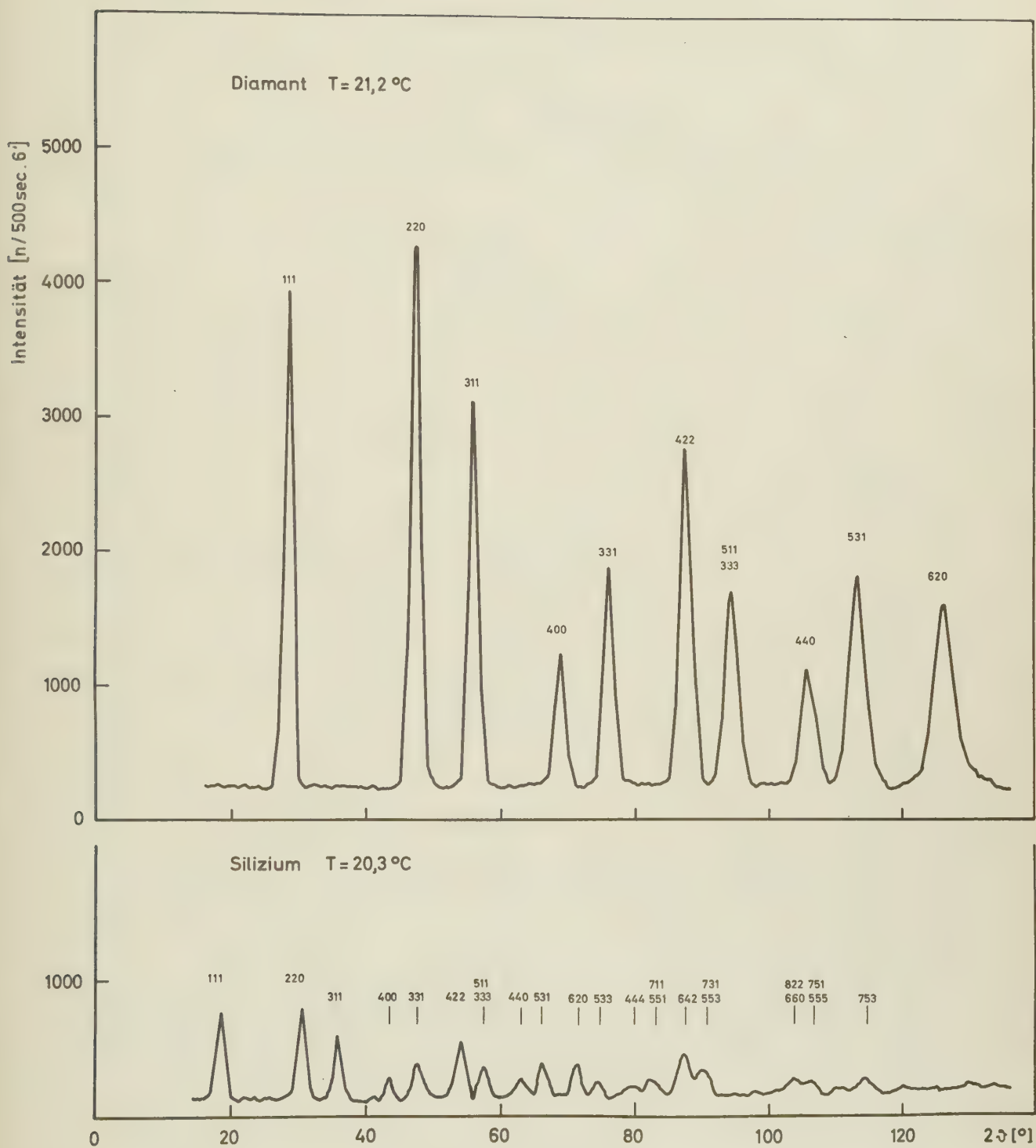


Abb. 5-1. Pulver-Diagramme von Diamant und Silizium
bei $\lambda = 1,00435\text{ \AA}$

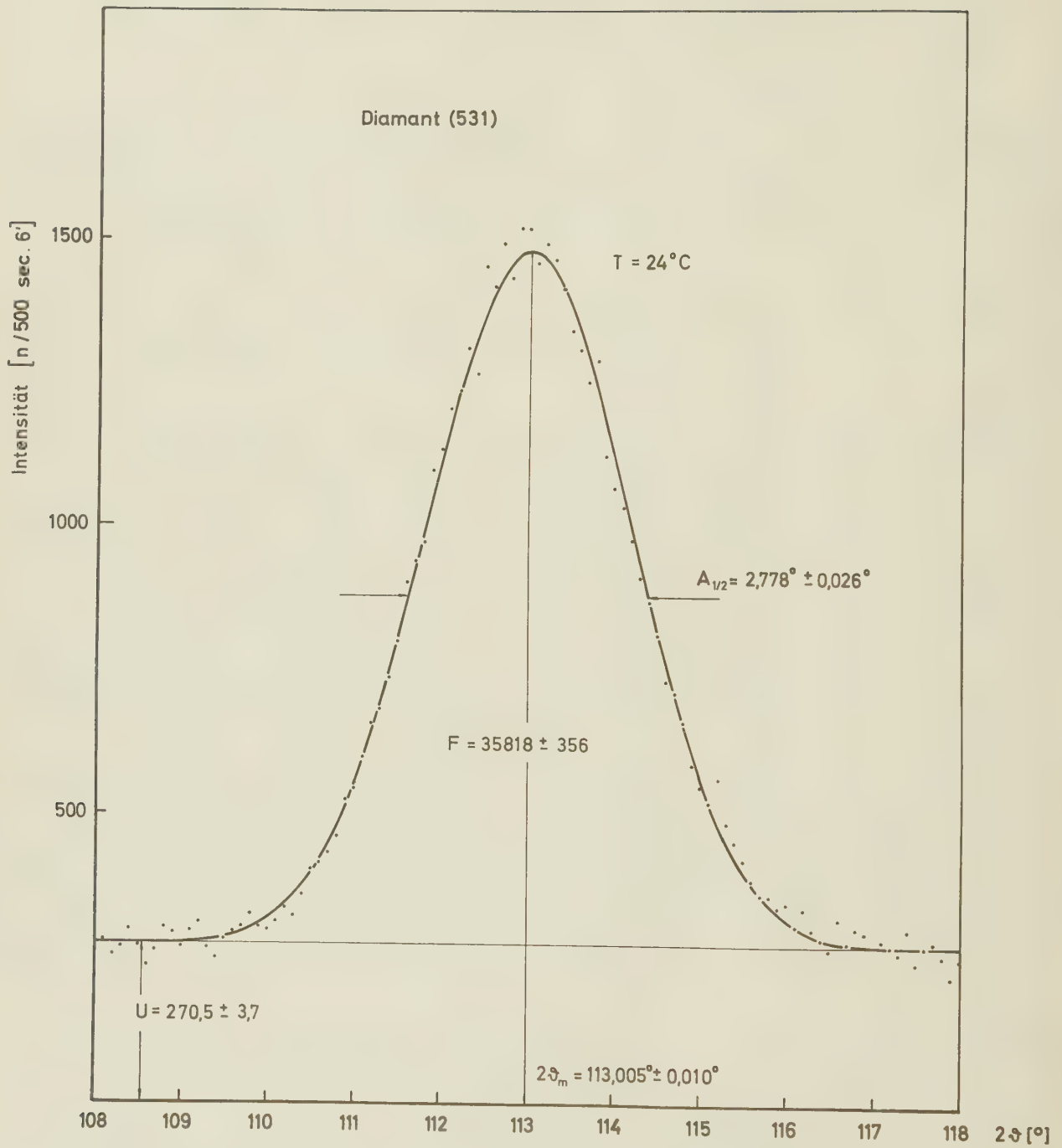


Abb. 5-2. Pulver-Reflex (531) von Diamant bei $T = 24^{\circ}\text{C}$
 $A_{1/2}$ = Halbwertsbreite, F = Intensität
 U = Untergrund, $2\theta_m$ = Lage des Maximums

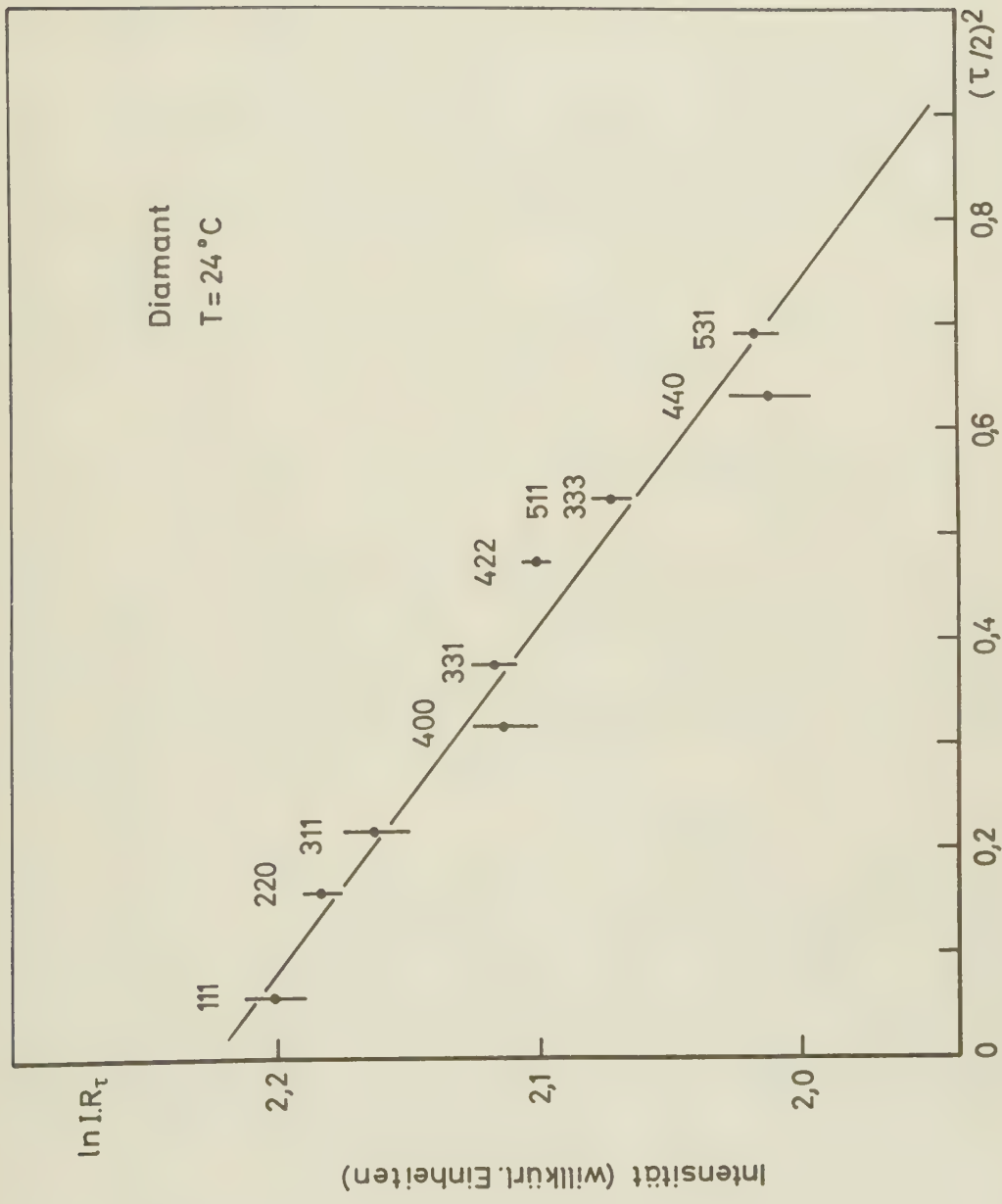


Abb. 5-3. Intensitäten der Pulver-Reflexe von Diamant bei T = 24° C

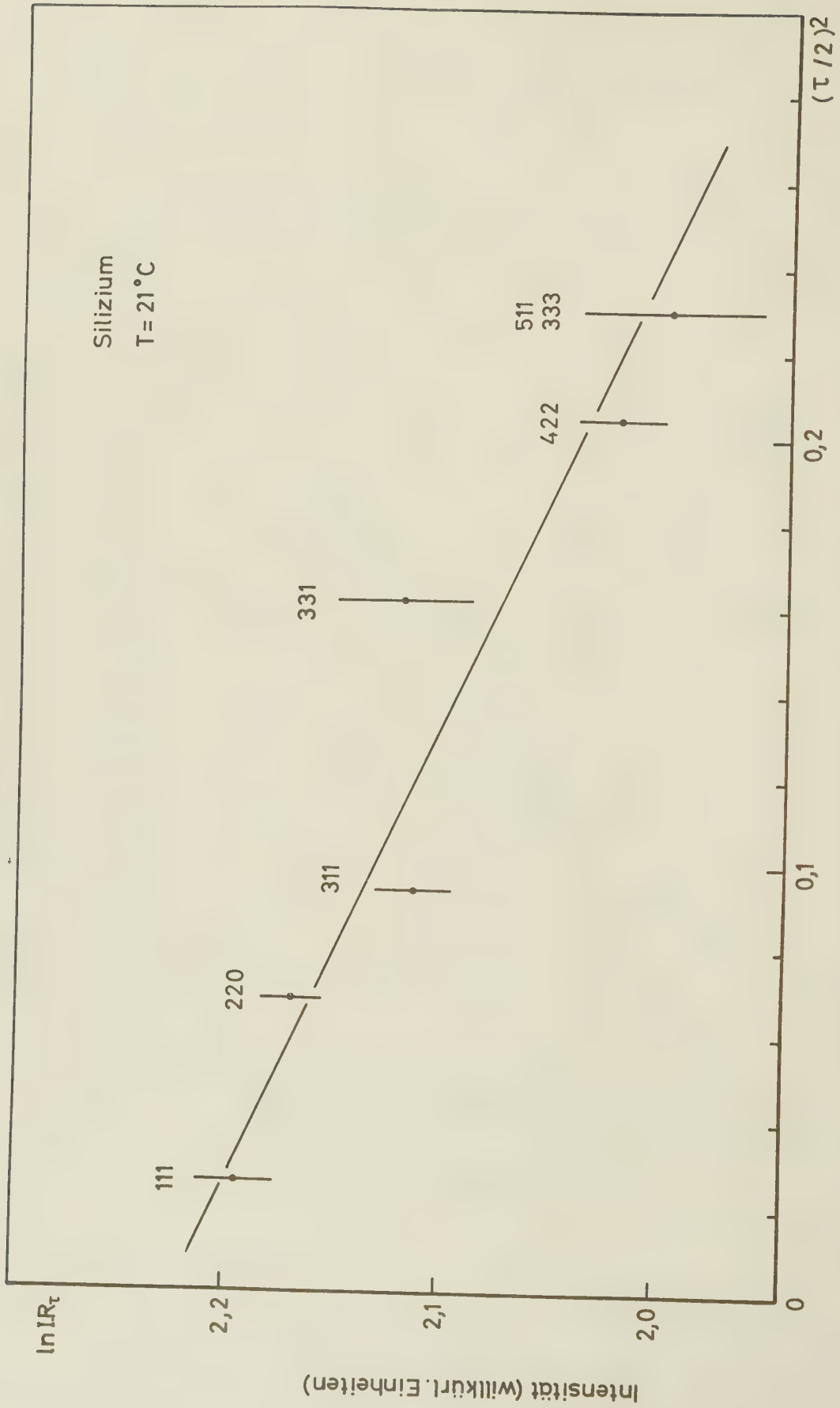


Abb. 5-4. Intensitäten der Pulver-Reflexe von Silizium bei T = 21°C

Temperaturabhängigkeit der Debye-Waller-Koeffizienten

Um den Debye-Waller-Koeffizienten als Funktion der Temperatur zu erhalten, können die Pulverdiagramme für verschiedene Temperaturen aufgenommen und nach dem oben beschriebenen Verfahren ausgewertet werden.

Die langen Meßzeiten, die an diesem Reaktor erforderlich sind, um eine genügend gute statistische Genauigkeit zu erhalten (bei schwachen Reflexen betrug die Meßzeit bis zu einer Woche), waren der Grund, daß die Temperaturabhängigkeit des Debye-Waller-Koeffizienten nach einer anderen Methode untersucht wurde.

Nach Gleichung (5-4) erhält man für $\tau = \text{const}$ und für die Temperaturen T und $T_0 = 20^\circ\text{C}$ ($\gamma = 1$)

$$W_T = r^2 \left[W_0 + \frac{1}{2} \frac{1}{(\tau/l)^2} \ln \frac{J_{T_0}}{J_T} r^2 \left(\frac{1 - \lambda^2 (\tau/l)^2}{1 - \lambda^2 (\tau/l \cdot 1/k)^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (5-5)$$

Bei bekanntem Debye-Waller-Koeffizient W_0 für die Bezugstemperatur $T_0 = 20^\circ\text{C}$ läßt sich also nach dieser Beziehung der Debye-Waller-Koeffizient W_T einer Temperatur T aus den Verhältnissen der bei den Temperaturen T und T_0 gemessenen Intensitäten eines einzelnen Reflexes ($\tau = \text{const}$) berechnen.

Die Temperaturabhängigkeit der Intensitäten wurde bei den Reflexen Diamant (531) und Silizium (422) gemessen, bei den tiefen Temperaturen $T = 80^\circ\text{K}$ mit flüssiger Luft und bei $T = 196^\circ\text{K}$ mit fester Kohlensäure und Äthyläther als Kühlmittel für den Kryostaten; bei den Temperaturen $> 20^\circ\text{C}$ konnten mit der Heizregelung beliebige Temperaturwerte eingestellt werden (s. Tab. III).

Die Reflexe wurden auf die gleiche Weise ausgewertet wie die Messungen bei Zimmertemperatur.

In Abb. 5-5 sind die an die Meßergebnisse angepaßten Gauß-Kurven des Reflexes Diamant (531) bei den Temperaturen $T = 24^{\circ} \text{C}$ und $T = 529^{\circ} \text{C}$ dargestellt. Bei der höheren Temperatur sind die Linienverschiebungen zu kleineren Reflexwinkeln auf Grund der thermischen Ausdehnung des Gitters, die Abnahme der Reflexintensität und die Zunahme des Untergrundes ersichtlich; die Halbwertsbreite des Reflexes bleibt gleich groß.

Als Bezugstemperatur wurde die Zimmertemperatur gewählt, bei der die W_0 -Werte aus den vorangegangenen Messungen bekannt sind. Die Werte für den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten γ von Diamant und Silizium wurden dem American Physics Handbook /133/ entnommen. Die Debye-Waller-Koeffizienten W_T von Diamant und Silizium wurden nach Gleichung (5-5) berechnet; sie sind in der Tab. III aufgeführt und in den Abb. 5-6 und 5-7 dargestellt und stimmen mit den von Jex /134/ aus Frequenzspektren von Dolling und Cowley /135/ berechneten Werten innerhalb der Fehlergrenzen gut überein. Dolling und Cowley haben die Frequenzspektren für Diamant und Silizium nach einem Schalenmodell berechnet und mit verfügbaren thermodynamischen und optischen Daten dieser Kristalle verglichen. Außerdem sind in diesen Abbildungen die W_T -Werte aus Messungen mit Röntgenstrahlen von Göttlicher /116/ und Schwitzgebel /117/ mit eingezeichnet.

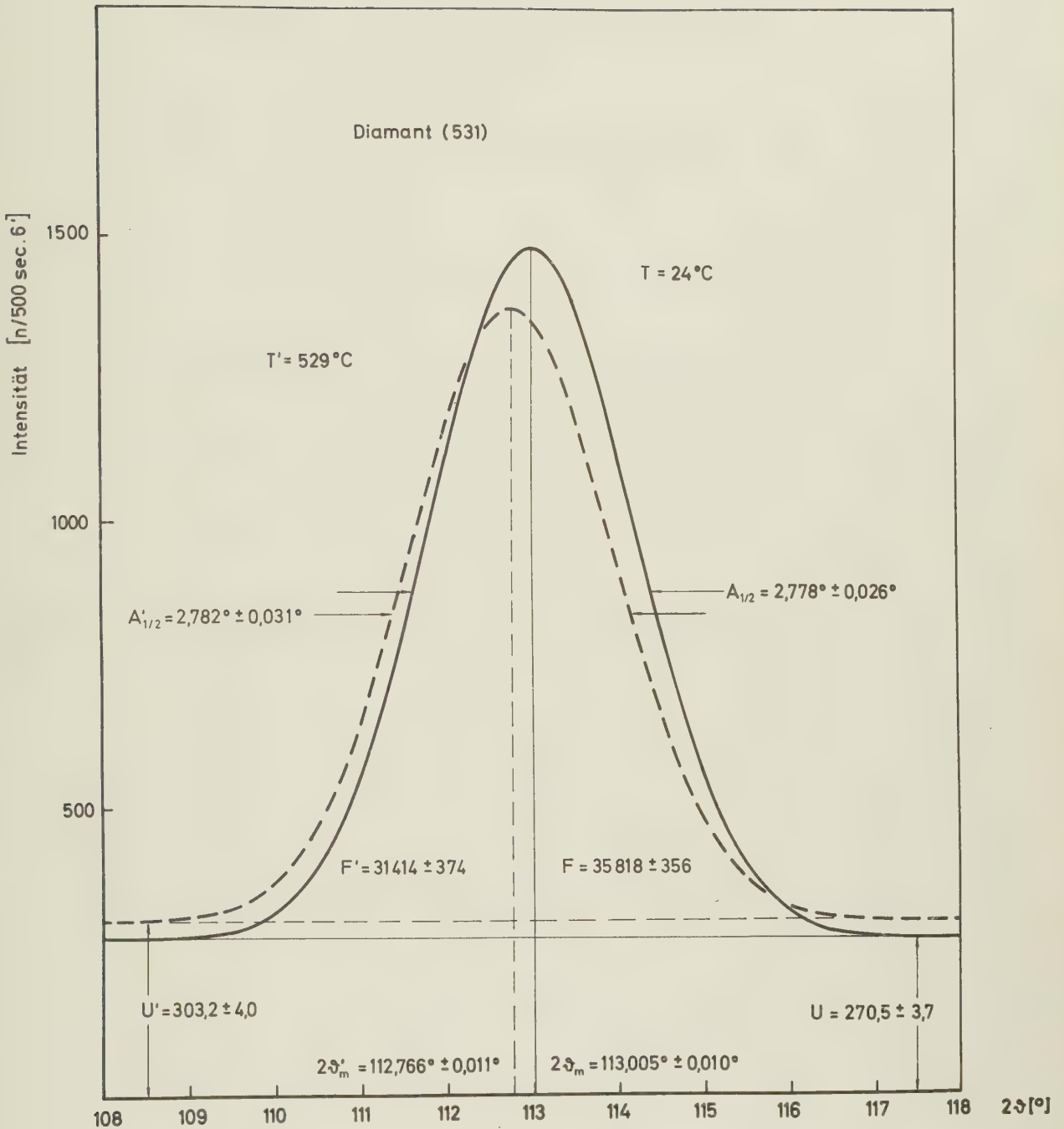


Abb. 5-5.

Pulver-Reflexe (531) von Diamant bei $T = 24^\circ\text{C}$ und $T = 529^\circ\text{C}$

$A_{1/2}$ = Halbwertsbreite, F = Intensität

U = Untergrund, $2\vartheta_m$ = Lage des Maximums

Tabelle III. Die Debye-Waller-Koeffizienten und Debye-Temperaturen von Diamant und Silizium;
gemessene, auf elastisch inkohärente Streuung korrigierte und theoretische Werte

T (°K)	$W_T \cdot 10^{16}$ (cm ²)			θ^W (°K)		
	gemessen	korrigiert	theor.	gemessen	korrigiert	theor.
Diamant	80	0.137 $\pm$ 0.016	0.136 $\pm$ 0.016	0.1312	1770 $\pm$ 160	1730 $\pm$ 160
	196	0.152 $\pm$ 0.016	0.151 $\pm$ 0.016	0.1353	1715 $\pm$ 160	1720 $\pm$ 160
	298	0.150 $\pm$ 0.013	0.150 $\pm$ 0.013	0.1443	1395 $\pm$ 140	1885 $\pm$ 140
	423	0.172 $\pm$ 0.016	0.173 $\pm$ 0.016	0.1711	1940 $\pm$ 120	1924 $\pm$ 120
	681	0.213 $\pm$ 0.017	0.222 $\pm$ 0.017	0.2086	1895 $\pm$ 80	1880 $\pm$ 80
	802	0.243 $\pm$ 0.017	0.243 $\pm$ 0.017	0.2339	1910 $\pm$ 70	1885 $\pm$ 70
Silizium	80	0.437 $\pm$ 0.182	0.420 $\pm$ 0.182	0.2250	324 $\pm$ 195	332 $\pm$ 195
	196	0.538 $\pm$ 0.216	0.530 $\pm$ 0.216	0.3657	408 $\pm$ 100	412 $\pm$ 100
	294	0.468 $\pm$ 0.079	0.468 $\pm$ 0.079	0.5060	529 $\pm$ 55	529 $\pm$ 55
	375	0.713 $\pm$ 0.111	0.721 $\pm$ 0.111	0.6274	474 $\pm$ 45	472 $\pm$ 45
	476	0.788 $\pm$ 0.108	0.806 $\pm$ 0.108	0.7820	505 $\pm$ 40	499 $\pm$ 40
	573	0.886 $\pm$ 0.105	0.914 $\pm$ 0.105	0.9325	521 $\pm$ 35	513 $\pm$ 35
	679	1.045 $\pm$ 0.110	1.082 $\pm$ 0.110	1.0981	520 $\pm$ 30	511 $\pm$ 30
	772	1.162 $\pm$ 0.112	1.208 $\pm$ 0.112	1.2441	525 $\pm$ 30	515 $\pm$ 30

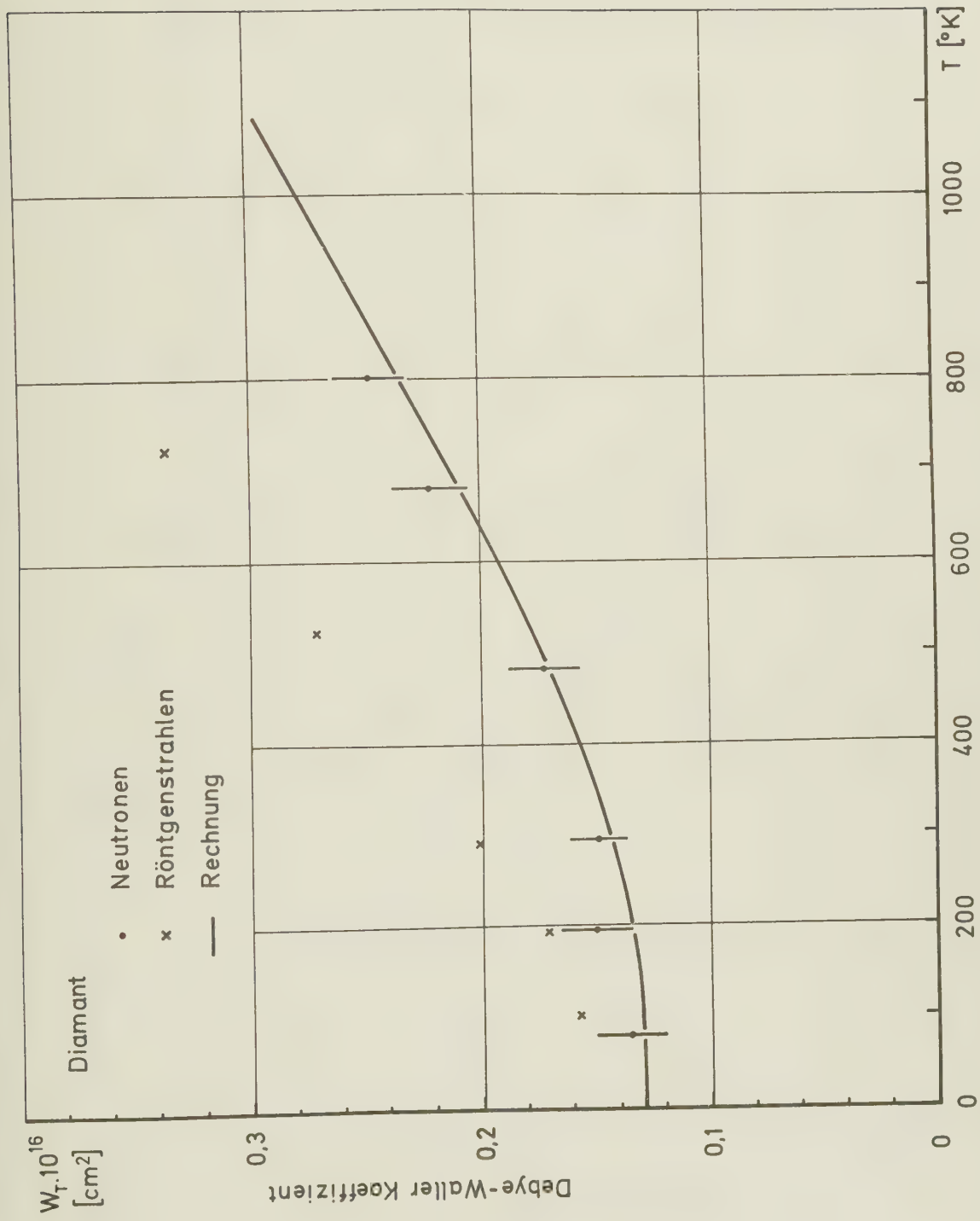


Abb. 5-6. Debye-Waller-Koeffizient von Diamant als Funktion der Temperatur

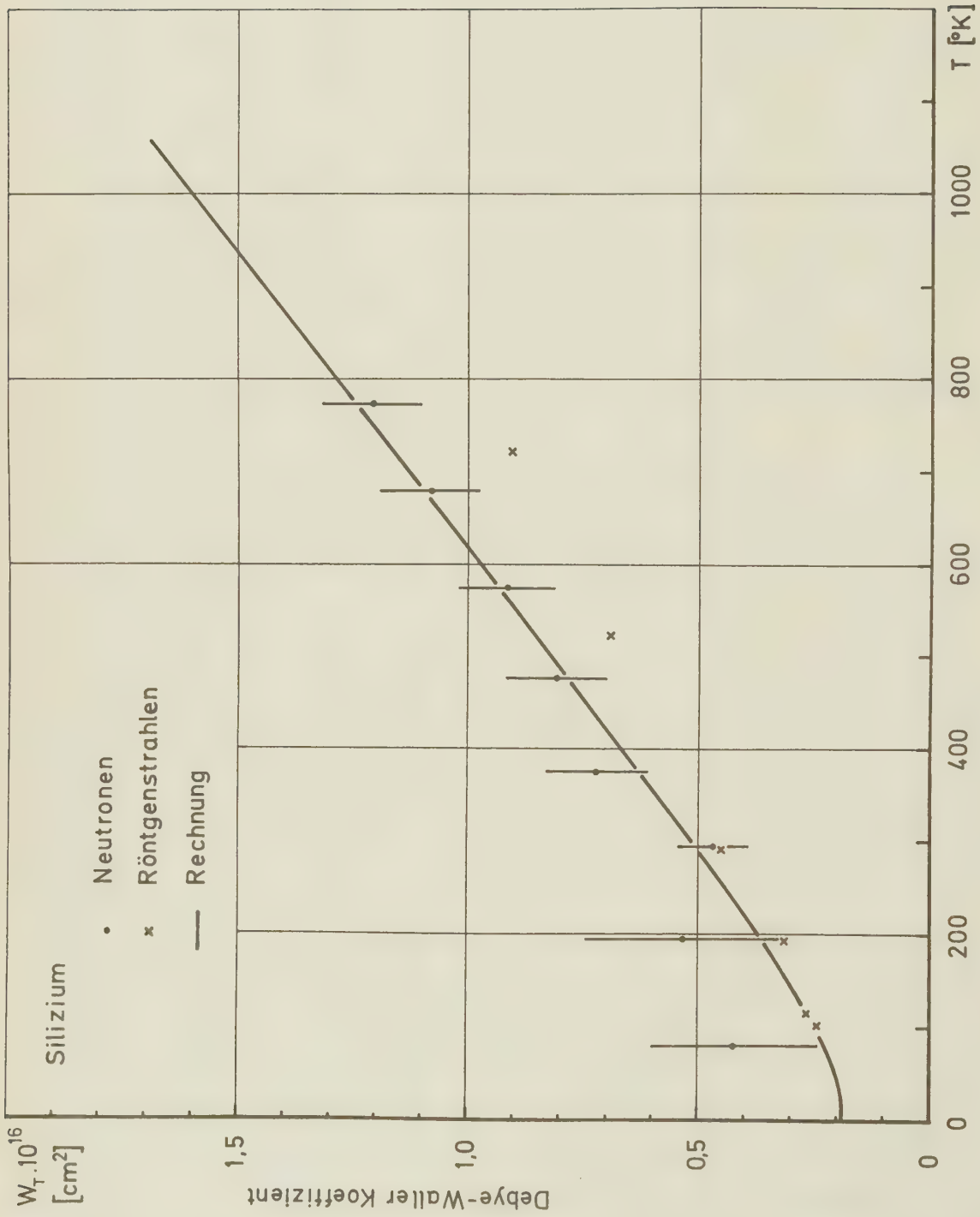


Abb. 5-7. Debye-Waller-Koeffizient von Silizium als Funktion der Temperatur

Debye-Temperaturen

Aus den thermodynamischen Zustandsgrößen und Eigenschaften der Kristalle, wie z.B. der Entropie S , freien Energie F , spezifischen Wärme C_V , lassen sich charakteristische Debye-Temperaturen θ^S , θ^F , θ^{C_V} über ein Debye-Frequenz-Spektrum ableiten. So erhält man auch für den Debye-Waller-Koeffizienten W eine entsprechende Debye-Temperatur θ^W .

Die von den verschiedenen physikalischen Eigenschaften eines Kristalles abgeleiteten Debye-Temperaturen sind nicht identisch ! (Blackman/136/). Bei Rechnungen ist darauf zu achten, daß die entsprechende Debye-Temperatur benützt wird, bei der Berechnung des Debye-Waller-Koeffizienten also θ^W .

Diamant und Silizium haben zwei Atome pro Elementarzelle; sie bestehen aus zwei kubisch-flächenzentrierten, identischen Gittern, die gegeneinander um den Vektor $(1/4 \ 1/4 \ 1/4)$ verschoben sind.

Salter /132/ zeigt, daß für die Elemente mit Diamant-Struktur (Diamant, Si, Ge, Sn) die beiden Gitter den gleichen Debye-Waller Koeffizienten W besitzen. Damit gilt für den Debye-Waller-Koeffizienten dieser Kristalle die gleiche Beziehung wie für einen kubischen Kristall mit nur einem Atom in der Elementarzelle (Bravais-Gitter):

$$W = \frac{8 \pi^2 \hbar}{m} \int z(\omega) \omega^{-1} d\omega \frac{1}{2} \beta \hbar \omega \quad (5-6)$$

m = Masse des Kerns

$z(\omega)$ = normierte Frequenzverteilung

β = $1/kT$

Setzt man für das Frequenzspektrum $z(\omega)$ eine Debye-Verteilung

$$z_D(\omega) = \frac{3 \omega^2}{\omega_D^3}$$

in Gl. (5-6) ein, so erhält man

$$W = \frac{1}{m \theta^W} \cdot \frac{6 h^2}{k} \left[\frac{\phi(x)}{x} + \frac{1}{4} \right] \quad (5-7)$$

$$x = \frac{\theta^W}{T}$$

$$\phi(x) = \frac{1}{x} \int_0^x \frac{\xi^2 d\xi}{e^{\xi} - 1} = \text{Debye-Funktion}$$

Meist wird mit verschiedenen Reihenentwicklungen für die Debye-Funktion $\phi(x)$ aus der Beziehung (5-7) die Debye-Temperatur θ^W näherungsweise berechnet (Laue /137/).

Das im folgenden beschriebene, einfache, graphische Verfahren zur Ermittlung von θ^W gilt für alle Werte von x . Gleichung (5-7) läßt sich umschreiben in

$$W.m = \frac{W'(x)}{\theta^W} = \frac{W'(\theta)_{T=\text{const}}}{\theta^W} \quad (5-8)$$

W'/θ^W wird als Funktion von $1/\theta^W$ für die verschiedenen Meßtemperaturen T als Parameter berechnet. Die Funktion

$$W' = \frac{6 h^2}{k} \left[\frac{\phi(x)}{x} + \frac{1}{4} \right]$$

kann man aus der Tabelle IV entnehmen. Sie wurde für $0 < 1/x < 10$ berechnet; dabei ist die Schrittweite so gewählt, daß zwischen zwei benachbarten Werten eine lineare Interpolation über den gesamten Bereich mit gleicher Genauigkeit möglich ist. In Abb. 5-8 ist die Funktion W'/θ^W dargestellt für die Temperatur $T = 0, 100, 300, 500, 700, 900^\circ \text{ K}$.

Aus dieser Darstellung läßt sich die Debye-Temperatur θ^W für den gemessenen Wert $W.m$ direkt ablesen.

Abb. 5-9 zeigt die aus den gemessenen Debye-Waller-Koeffizienten W berechneten Debye-Temperaturen θ^W für Neutronen (diese Arbeit), für Röntgenstrahlen (Göttlicher /116/, Schwitzgebel /117/) und außerdem die Debye-Temperaturen aus den berechneten Debye-Waller-Koeffizienten (Jex /134/).

Tabelle IV. Werte des Faktors $W' = 6h^2/k \left[\phi(x)/x + 1/4 \right]$

1/x	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
0.0	0.4770	0.4773	0.4782	0.4798	0.4820	0.4848	0.4883	0.4924	0.4971	0.5024
0.1	0.5084	0.5149	0.5221	0.5299	0.5383	0.5472	0.5567	0.5666	0.5771	0.5881
0.2	0.5994	0.6112	0.6234	0.6360	0.6489	0.6621	0.6757	0.6895	0.7036	0.7179
0.3	0.7325	0.7473	0.7623	0.7774	0.7928	0.8083	0.8240	0.8399	0.8558	0.8720
0.4	0.8382	0.9045	0.9210	0.9376	0.9542	0.9710	0.9878	1.0048	1.0218	1.0389
0.5	1.0560	1.0732	1.0905	1.1079	1.1253	1.1427	1.1602	1.1778	1.1954	1.2131
1.0	1.9604	2.1465	2.3334	2.5209	2.7083	2.8971	3.0857	3.2746	3.4637	3.6529
2.0	3.8424	4.0319	4.2216	4.4113	4.6012	4.7911	4.9811	5.1711	5.3612	5.5513
3.0	5.7415	5.9318	6.1220	6.3123	6.5026	6.6930	6.8834	7.0738	7.2642	7.4546
4.0	7.6451	7.8356	8.0261	8.2166	8.4071	8.5976	8.7881	8.9787	9.1693	9.3598
5.0	9.5504	9.7410	9.9316	10.1222	10.3128	10.5034	10.6941	10.8847	11.0753	11.2660
6.0	11.4566	11.6473	11.8379	12.0286	12.2192	12.4099	12.6006	12.7913	12.9819	13.1726
7.0	13.3633	13.5540	13.7447	13.9354	14.1261	14.3168	14.5075	14.6982	14.8889	15.0796
8.0	15.2703	15.4610	15.6518	15.8425	16.0332	16.2239	16.4146	16.6054	16.7961	16.9868
9.0	17.1776	17.3683	17.5590	17.7498	17.9405	18.1312	18.3220	18.5127	18.7034	18.8942
10.0	19.0849									

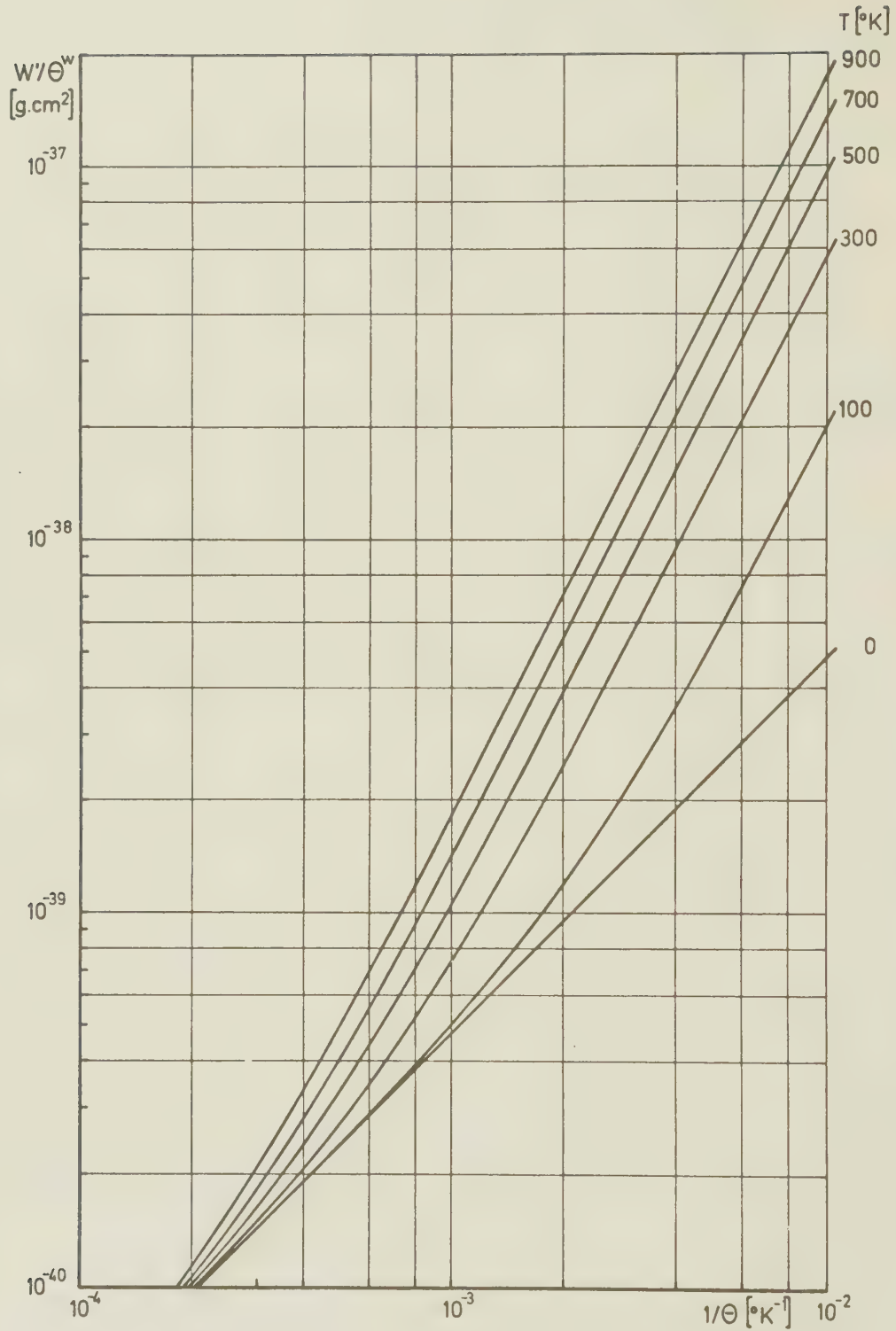


Abb. 5-8. Diagramm für die Ermittlung von Debye-Temperaturen aus Debye-Waller-Koeffizienten

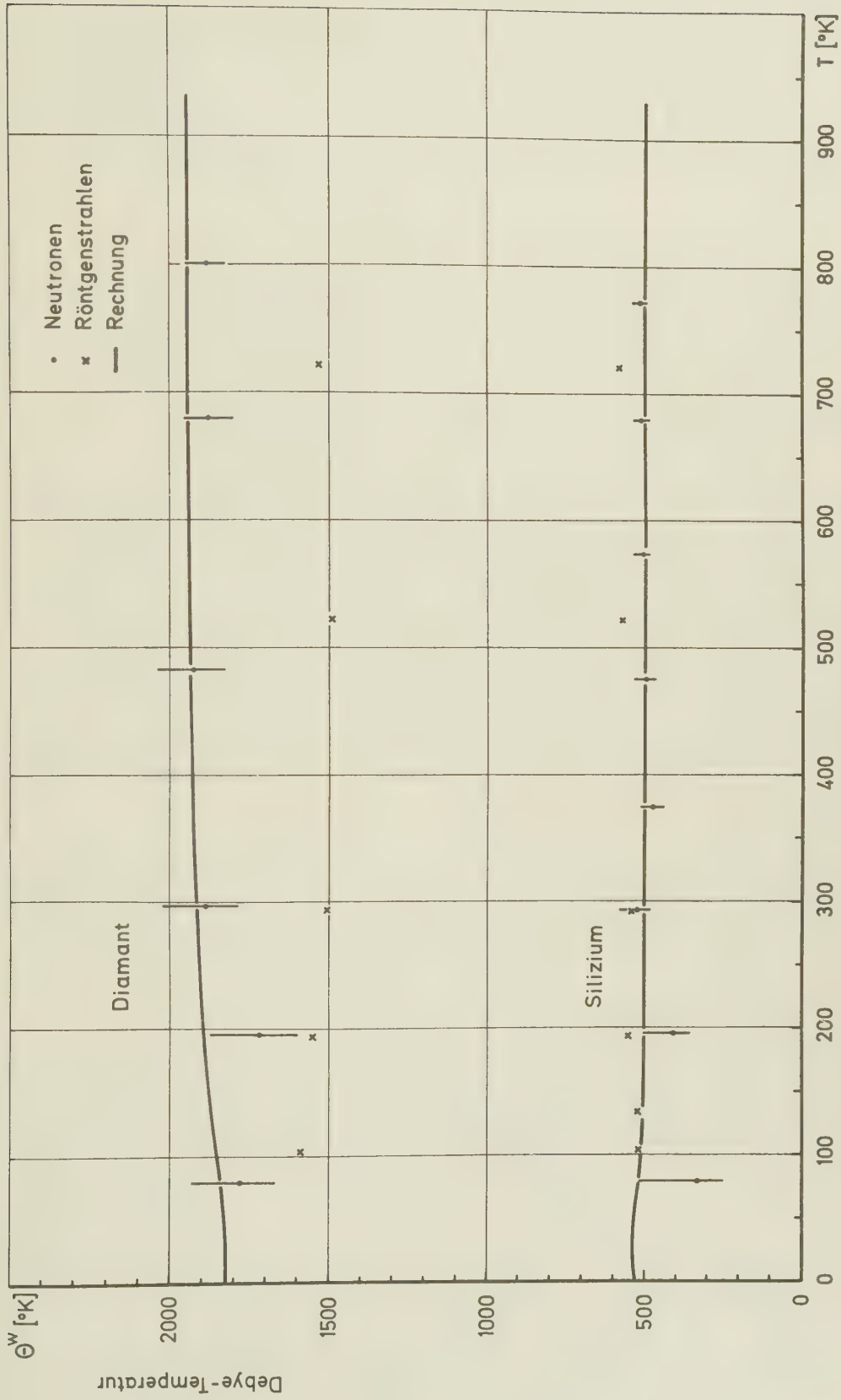


Abb. 5-9. Debye-Temperaturen von Diamant und Silizium

Diskussion der Ergebnisse

Die Ergebnisse dieser Arbeit sind mit den aus Röntgenmessungen und theoretisch ermittelten Debye-Waller-Koeffizienten für Diamant und Silizium in den Abb. 5-6,7 und die daraus gerechneten Debye-Temperaturen in der Abb. 5-9 zusammenfassend dargestellt.

Die mit Neutronen gemessenen Debye-Waller-Koeffizienten stimmen mit den aus Frequenzspektren berechneten Werten innerhalb der Fehlergrenzen gut überein; die Daten aus Röntgenmessungen weichen bei Diamant über den gemessenen Temperaturbereich und bei Silizium bei hohen Temperaturen ab.

Bei der Streuung von Neutronen an Atomen findet die Wechselwirkung mit den Atomkernen, bei Röntgenstrahlen mit den Elektronen der Atomhülle statt. Nach der Theorie /114,115/ sollten die aus beiden Meßmethoden gewonnenen Debye-Waller-Koeffizienten gleich sein; dies bedeutet, daß die mittleren Amplitudenquadrate der Schwingungen der Kerne und der Atomhüllen im Gitter gleich groß sind.

Für die Abweichungen der Röntgendaten wurde keine Erklärung gefunden.

Die Debye-Waller-Koeffizienten sind bei der Temperatur $T = 0^{\circ}\text{K}$ für

Diamant mit $W(T = 0) = 0,130 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$
und für Silizium mit $W(T = 0) = 0,180 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$

fast gleich groß, d.h. die Nullpunktsenergie dieser beiden Gitter ist praktisch die gleiche. Mit zunehmender Temperatur jedoch nimmt der Debye-Waller-Koeffizient von Diamant weit weniger zu als der vom Silizium, so daß bei der Temperatur $T = 1000^{\circ} \text{K}$ der Nullpunktsanteil des Debye-Waller-Koeffizienten bei Diamant 50 %, bei Silizium jedoch nur 10 % beträgt. Dies bedeutet, daß die mittleren Auslenkungen der Atome des Gitters aus der Gleichgewichtslage mit zunehmender Temperatur bei Diamant kleiner sind als bei Silizium, die Bindungskräfte im Diamant größer sind als die im Silizium.

Die Methode , den Debye-Waller-Koeffizienten als Funktion der Temperatur aus nur einem Reflex nach Gleichung (5-5) zu bestimmen, ist sehr einfach, es läßt sich dadurch erhebliche Meßzeit einsparen. Der Debye-Waller-Koeffizient W_T hängt jedoch sehr empfindlich von dem Bezugswert W_0 ab.

Die Intensitäten der Pulver-Reflexe wurden bei Diamant auf etwa $\pm 1 \%$, bei Silizium auf etwa $\pm 2 \%$ genau gemessen.

Die Fehler der Debye-Waller-Koeffizienten setzen sich aus verschiedenen Anteilen zusammen: bei der üblichen Methode zur Bestimmung der Debye-Waller-Koeffizienten bei konstanter Temperatur aus einer Reihe von Reflexen hat die Bandbreite des monochromatischen Strahles - vor allem bei hoch indizierten Reflexen - einen entscheidenden Einfluß. Bei der Ermittlung der Debye-Waller-Koeffizienten als Funktion der Temperatur aus nur einem Reflex nach Gleichung (5-5) hängt der Fehler von W_T außer von den Fehlern der gemessenen Intensitäten noch vom Fehler des Bezugswertes W_0 ab.

Die Fehler der in dieser Arbeit gemessenen Debye-Waller-Koeffizienten sind im günstigsten Fall $\pm 7 \%$. Höhere Genauigkeiten lassen sich an Diffraktometern mit größerer Intensität des monochromatischen Neutronenstrahles erreichen.

Meßgenauigkeiten $< 1 \%$ für den Debye-Waller-Koeffizienten wären sehr wünschenswert, um verschiedene theoretische Modelle prüfen und anharmonische Anteile der Gitterschwingungen bestimmen zu können.

L i t e r a t u r

Einkristall-Spektrometer

- /1/ Zinn W.H.
Diffraction of Neutrons by a Single Crystal
Phys. Rev. 71 (1947) 752

- /2/ Sawyer R.B., Wollan E.O., Bernstein S., Peterson K.C.
A Bent Crystal Neutron Spectrometer and its Application
to Neutron Cross-Section Measurements
Phys. Rev. 72 (1947) 109

- /3/ Hurst D.G., Pressesky A.J., Tunnicliff P.R.
The Chalk River Single Crystal Neutron Spectrometer
Rev. Sci. Instr. 21 (1950) 705

- /4/ Bernstein S., Borst L.B., Stanford C.P., Stephenson T.E.,
Dial J.B.
Slow Neutron Crystal Spectrometry: Total Cross Sections
of Co, Er, Hf, Ni-58, Ni 60, Ho; Fission Sm
Phys. Rev. 87 (1952) 487

- /5/ Borst L.B., Sailor V.L.
Neutron Measurements with the Brookhaven Crystal Spectro-
meter
Rev. Sci. Instr. 24 (1953) 141

- /6/ Evans J.E.
A Preliminary Report on the MTR Crystal Spectrometer
IDO 16120 (1953)

- /7/ Auclair J.M., Hubert P., Vendryes G.
Neutron Spectroscopy by Crystalline Diffraction
J. Phys. Radium 16 (1955) 50

- /8/ Abou Y.G.
A Bent Crystal Neutron Spectrometer with Quartz Monocrystal
Proc. of Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy
Ac. of Sciences U.S.S.R. (1955)

- / 9/ Sailor V.L., Foote H.L., Landon H.H., Wood R.E.
High Resolution Crystal Spectrometer for Neutrons
Rev. Sci. Instr. 27 (1956) 26
- /10/ Pattenden N.J., Baston A.H.
The Construction and Operation of a Single Crystal
Neutron Spectrometer
A.E.R.E. NP/R 2251 (1957)
- /11/ Peterson S.W., Levy H.A.
A Single Crystal Neutron Spectrometer for a High Flux
Reactor
Abstract, ACA Annual Meeting, Cornell University (1959)
- /12/ Bally D., Tarina E., Olteanu I., Todireanu S.
The Neutron Crystal Spectrometer of the Institute of
Atomic Physics Bucharest
I.F.A./F.N./20 (1959)
- /13/ Bally D., Todireanu E., Terina E., Olteanu I.
A Plane-Crystal and Bent-Crystal High Resolving-Power
Neutron Spectrometer
Rev. Sci. Instr. 31 (1960) 640
- /14/ Schermer R.I.
A Crystal Monochromator for Neutron Spectrometry
TID - 14863 (1960)
- /15/ Bjerrum Møller H., Shore J.F., Sailor V.L.
Neutron Spectrometer for Producing Pure Monochromatic
Beams in the Thermal Region
Rev. Sci. Instr. 32 (1961) 654
- /16/ Giacchetti G., Musci M., Poletti G.
A Slow Neutron Crystal Spectrometer
Energie Nucl. 10 (1963) 173
- /17/ Jones I.R.
The LPTR Single Crystal Neutron Spectrometer at
Reactor Spectrum Measurements
UCRL - 7611 (1963)

- /18/ Bagge E., Kürsten H.
Ein Neutronen-Kristallspektrometer am FRG zur
Messung thermischer Neutronenspektren
Atomkernenergie 9 (1964) 47
- /19/ Rustad B.M., Melkonian E., Hauens W.W., Taylor T.I.,
Gould F.T., Moore J.A.
Neutron Crystal Spectrometer with Range Extended to
Subthermal Energies
Rev. Sci. Instr. 36 (1965) 887
- /20/ Albold E.
Das Karlsruher Präzisions-Kristallspektrometer für
Neutronen
Kerntechnik 8 (1966) 309

Auflösungsvermögen von Einkristall-Spektrometern

- /21/ Popovici M., Gelberg D.
On Optical Properties of the Neutron Crystal Spectrometers
Nucl. Instr. Methods 40 (1966) 77
- /22/ Compton A.H., Allison S.K.
X-Ray in Theory and Experiment
Van Nostrand (1935) 2nd ed. p. 714
- /23/ Bally D., Todireau S., Tarina E., Olteanu I.
A Plane-Crystal and Bent-Crystal High Resolving-Power
Neutron Spectrometer
Rev. Sci. Instr. 31 (1960) 640

Mehrfache Bragg-Reflexionen

- /24/ Hay H.J.
The Importance of Multiple Bragg Scattering for
Neutron Crystal Spectrometers
AERE-R 2982 (1959)
- /25/ Spencer R.R., Smith I.R., Brugger R.M.
Composition of Neutron Beams from Crystal Monochromators,
Symposium on Pile Neutron Research in Physics
IAEA, Vienna (1960) 433
- /26/ Blinowski K., Sosnowski J.
Parasitic Reflections in Neutron Monochromators
Symposium on Pile Neutron Res., IAEA-Vienna (1960) 445
Nucl. Instr. Methods 10 (1961) 289
- /27/ Spencer R.R., Smith J.R.
Competitive Extinction in Neutron Monochromating Crystals
Nucl. Sci. Eng. 8 (1960) 393
- /28/ O'Connor D., Sosnowski J.
Parasitic Multiple Bragg Scattering in the Neutron
Crystal Spectrometer
Polska Akademia Nau Rep. 134/I-B (1960)
Acta Cryst. 14 (1961) 292
- /29/ Duggal V.P., Rao K.R. Thapar C.L., Singh V.
Anomal Reflections in an Single Crystal Neutron
Spectrometer
Proc. Indian Acad. Sci., Sct. A. 53 (1961) 59
- /30/ Willis B.T.M., Valentine T.M.
Double Bragg Scattering of Thermal Neutrons by Th₂ and UO₂
AERE-R 3959 (1962)

Diffraktometer

- /31/ Wollan E.O., Shull C.G.
The Diffraction of Neutrons by Crystalline Powders
Phys. Rev. 73 (1948) 830
- /32/ Bacon G.E., Smith J.A., Whitehead C.D.
Some Mechanical Features of a Double-Crystal Neutron
Spectrometer
J. Sci. Instr., 27 (1950) 330
- /33/ Lowde R.D.
Single-Crystal Neutron Diffraction Analysis
Nature 167 (1951) 243
- /34/ Corliss L.M., Hastings J.M., Brockmann F.G.
Neutron Diffraction Study of Magnesium Ferrite (MgFe_2O_4)
Phys. Rev. 90 (1953) 1013
- /35/ Pepinsky R., Fazer B.C., McKeown M.L.
New Goniometers for Single-Crystal Neutron Diffraction
Studies
Rev. Sci. Instr. 25 (1954) 699
- /36/ Pepinsky R., Frazer B.C.
Modification of General Electric SPG Goniometer
for Single-Crystal Neutron Diffraction Measurement
Rev. Sci. Instr. 26 (1955) 402
- /37/ Bacon G.E., Dyer R.F.
A Spectrometer for Single Crystal Neutron Diffraction
J. Sci. Instr. 32 (1955) 256
- /38/ Breton C., Hubert P., Meriel P.
Spectrometre a Neutrons pour l'Analyse Cristalline
J. Phys. Radium 13 (1957) 2S.
- /39/ Bykov V.M., Vinogradov S.I., Levдик A.V., Golovkin V.S.
A Double Crystal Neutron Spectrometer
Soviet Phys. Cryst. 2 (1957) 626

- /40/ Barstad G.E.B., Adresen A.F.
Single Crystal Goniometer for X-Ray and Neutron Diffraction
Rev. Sci. Instr. 28 (1957) 916
- /41/ Goedkoop J.A., Loopstra B.O.
Neutron Diffraction and Structure Studies in Kjeller
Ned. Tijdschr. Natuurk. 25 (1959) 29
- /42/ O'Connor D., Bonkowski L.
A Universal Double-Crystal Neutron Spectrometer
Acta Phys. Polon. 18 (1959) 265
- /43/ Bacon G.E., Dyer F.R.
Neutron Diffraction Instruments at a High-Flux
Nuclear Reactor
J. Sci. Instr. 36 (1959) 419
- /44/ Prince E., Abrahams S.C.
Single-Crystal Automatic Neutron Diffractometer
Rev. Sci. Instr. 30 (1959) 581
- /45/ Langdon F., Frazer B.C.
Automatic Control and Programming Systems for Single-
Crystal Diffractometry
Rev. Sci. Instr. 30 (1959) 997
- /46/ Petch H.E., Brower W., Brown I.D., Torrie B.H.
A Neutron Diffractometer for a Pool Reactor
Research React. J. 1 (1960) 8
- /47/ Maschinenfabrik Augsburg-Nürnberg AG München
German Neutron Diffraction Apparatus
Nucl. Energy 14 (1960) 269
- /48/ Lutz G.
Die experimentelle Technik der Neutronenbeugung
Kerntechnik 2 (1960) 391

- /49/ Meinhardt D., Krisement O.
Strukturuntersuchung des Chromkarbids Cr_3C_2 mit
thermischen Neutronen
Z. Naturforsch. 15a (1960) 880
- /50/ Yamzin I.I.
Apparatus for Neutron Diffraction Structural Analysis
Soviet Phys. Cryst. 4 (1960) 397
- /51/ Ozerov R.P., Kiselev S.V., Karporich I.R., German'kov V.I.,
Loshmanov A.A.
A Remotely Controlled Neutron Diffractometer Based
on an Gur-3 Unit
Soviet Phys. Cryst. 5 (1960) 294
- /52/ Mead W., Sparks J.T.
The Livermore Neutron Diffraction Spectrometer
Bull. Am. Phys. Soc. 5 (1960) 464
- /53/ Takei J.W., Frazer B.C., Shirane G.
Neutron Diffraction Facility at the Westinghouse
Testing Reactor
Bull. Am. Phys. Soc. 5 (1960) 464
- /54/ Wollan E.O., Wilkinson M.G., Koehler W.C., Cable J.W.,
Child H.R.
The ORNL Neutron Diffractometer for Magnetic Studies
Bull. Am. Phys. Soc. 5 (1960) 464
- /55/ Shull C.G.
Neutron and X-Ray Diffraction Studies of Solids
AFOSR TR 60 (1960)
- /56/ Zivanović M.D., Jović D.M., Konstantinović J.M
Double-Crystal Neutron Spectrometer
Bull. Inst. Nucl. Sci. "Boris Kidrich" 11 (1961) 59

- /57/ Kleinstück K.
Das Neutronendiffraktometer für Beugungsexperimente
am Rossendorfer Forschungsreaktor
Kernenergie 4 (1961) 913
- /58/ Betzl M., Kleinstück K.
Die automatisierte Meßeinrichtung des Neutronen-
diffraktometers am Rossendorfer Forschungsreaktor
Kernenergie 4 (1961) 923
- /59/ Ang W.S., Chang H.C., Yang T.L., Chu T.S., Li K.T.
Operation and Characteristics of Neutron Diffractometer
Wu Li Hsueh Pao 17 (1961) 222
- /60/ Mueller M.H., Heaton L., Sidhu S.S., Terandy J.
Stepping Mechanism for X-Ray and Neutron Diffractometers
and Spectrometers
Rev. Sci. Instr. 32 (1961) 456
- /61/ Lambe K.A.D., House K.D., Valentine T.M., Willis B.T.M.
Single-Crystal Neutron Diffraction Instruments at DIDO
AERE-R-3709 (1961)
- /62/ Prince E.
The NRL Automatic Single-Crystal Neutron Diffractometer
NRL-5744 (1961)
- /63/ Caglioti G., de Agostino E., Marsili F., Paoletti A.
Pellegrini U., Ricci F.P.
Lo spettrometro a cristello per la diffrazione dei
neutroni presso il centro di Ispra
Nuovo Cimento, Suppl. 23 (1962) 17
- /64/ Yamzin I.I., Staritsyn V.E., Nozik Yu.Z.,
A small Neutron Diffractometer
Soviet Phys. Cryst. 7 (1962) 53

- /65/ Kraśnicki S., Pawelczyk J., Rapacki H.
The Cracow Neutron Crystal Spectrometer
Nukleonika Polska 7 (1962) 223
- /66/ Dachs H., Stehr E.
The Use of Flat and Curved Monochromator Crystals in
Neutron Spectrometer for Investigating Single Crystals
Z. Krist. 117 (1962) 135
- /67/ Willis B.T.M.
Single-Crystal Neutron Diffraction Equipment at the
DIDO Reactor
J. Sci. Instr. 39 (1962) 590
- /68/ Kunitomi N., Hamaguchi Y., Sakamoto M., Komura S.
Neutron Diffractometer JAERI
J. Phys. Soc. Jap. 17 Suppl. B-II (1962) 354
- /69/ Miyake S., Hoshino S., Suzuki K., Katsuragi H., Hagihara S.
Yoshie T., Miyashita K.
Single-Crystal Neutron Diffractometer with Automatic
Programming-Control System
J. Phys. Soc. Jap. 17, Suppl. B-II (1962) 358
- /70/ Hagihara S., Miyashita K., Yoshie T., Ohno E., Mogi M.
Three Neutron Diffractometers
Mishubishi Denki Lab. Rep. 3 (1962) 111
- /71/ Arndt U.W.
The Harwell Mark I Automatic Neutron Diffractometer
AERE-R 4143 (1962)
- /72/ Arndt U.W., Willis B.T.M.
The Harwell Mark II Automatic Neutron Diffractometer
Installation
AERE-R 4162 (1962)

- /73/ Mueller M.H., Heaton L., Sidhu S.S., Terandy J.
Argonne Dual Neutron Diffractometers Using a Single
Primary Beam
ANL-6537 (1962)
- /74/ Arndt U.W., Willis B.T.M.
A Programmed Multi-Channel Neutron Diffractometer
Installation
Nucl. Instr. Methods 24 (1963) 155
- /75/ Heaton L., Mueller M.H., Johanson E.W.
A - 2 θ Stepping Motion Without Gears
Nucl. Instr. Methods 24 (1963) 411
- /76/ Szabó P., Kreñ E., Gordon J.
High Intensity Neutron Diffractometer
Acta Phys. Acad. Sci. Hung. 15 (1963) 203
- /77/ Yamzin I.I., Kuz'minov Y.S., Staritsyn V.E.
A Neutron Diffractometer
Soviet Phys. Cryst. 8 (1963) 234
- /78/ Iyengar P.K.
Neutron Spectrometry at Trombay
Crystallography and Crystal Perfection
Academic Press (1963) p. 279
- /79/ Bowes H., Dyer R.F.
A Neutron Crystallography Rig Design Manual
AERE-R-4305 (1963)
- /80/ Zivadinovic M.S.
The Neutron Diffractometer at Vinca
NP - 14131 (1963)
- /81/ Loopstra B.O.
Neutron Diffraction in the High Flux Reactor
Atoomenergie Haar Toepassingen 6 (1964) 74

- /82/ Busing W.R., Smith H.G., Peterson S.W., Levi H.A.
Experience with the Oak Ridge Automatic Three-Circle
Neutron Diffractometer
J. Phys. 25 (1964) 495
- /83/ Atoji M.
A Multipurpose Neutron Diffractometer
ANL-6920 (1964)
- /84/ Lambe K.A.D.
A Neutron Diffraction Assembly at Pluto
AERE-R 4643 (1964)
- /85/ Kevey A.
Universal Spectrometer I.
BNL 851 (T-337) (1964)
- /86/ Atoji M.
Multipurpose Neutron Diffraction Instrumentations
Nucl. Instr. Methods 35 (1965) 13
- /87/ Yamzin I.I., Sizov R.A.
A Two-Coordinate Neutron Diffractometer
Soviet Phys. Cryst. 9 (1965) 797
- /88/ Stoll E., Haelg W.
A Double-Axis Neutron Diffractometer and General
Criteria for Optimization of its Resolution for
Powder Investigations
Z. Angew. Math. Phys. 16 (1965) 817
- /89/ Hagihara S., Miyashita K.
Double Neutron Diffractometer for Ames Laboratory in USA
Mishubishi Denki Giho 39 (1965) 1076
- /90/ Tunkelo E., Kajamaa J.
A Small Neutron Diffractometer
Nucl. Instr. Methods 40 (1966) 125

Kollimatoren

- /91/ Soller W.
A New Precision X-Ray Spectrometer
Phys. Rev. 24 (1924) 153
- /92/ Hastings J.M., Corliss L.M.
Neutron Diffraction Studies of Zinc Ferrite and
Nickel Ferrite
Rev. Mod. Phys. 25 (1953) 114
- /93/ Joki E.G., Evans J.E., Smith J.R.
A High Resolution Soller Slit Collimator for Use
with the MTR Neutron Crystal Spectrometer
IDO-16356 (1956)
- /94/ Caglioti G., Casali F.F.
Rubber Soller Slit Collimators for Neutron Spectrometry
Rev. Sci. Instr. 33 (1962) 1103
- /95/ Jones I.R., Bartolini W.
Suppression of Total Reflection of Neutrons
from Collimator Surfaces
Rev. Sci. Instr. 34 (1963) 28
- /96/ Szabo P.
On the Optimum Dimensions of Collimators for Neutron
Diffraction
Nucl. Instr. Methods 5 (1959) 184
- /97/ Szabo P.
On the Effect of Total Reflection on the Optimum
Dimensions of Collimators for Neutron Crystal
Spectrometers and Diffractometers
Nucl. Instr. Methods 6 (1960) 183
- /98/ Szabo P.
Optimum Dimensions of Collimators for Neutron Crystal
Spectrometers and Diffractometers
Acta Cryst. 13 (1960 b) 983
- /99/ Jones I.R.
Calculation of the Optimum Dimensions of Collimators
for Neutron Diffraction
Rev. Sci. Instr. 33 (1962) 1399

Auflösungsvermögen von Einkristall-Diffraktometern

- /100/ Caglioti G., Paoletti A., Ricci F.P.
On Resolution and Luminosity of Neutron Diffraction
Spectrometer for Single Crystal Analysis
Nucl. Instr. Methods 9 (1960) 195
- /101/ Caglioti G., Ricci F.P.
Resolution and Luminosity of Crystal Spectrometers for
Neutron Diffraction
Nucl. Instr. Methods 15 (1962) 155
- /102/ Caglioti G.
Accurate Intensity Measurements in Single-Crystal
Analysis by Neutron Diffraction
Acta Cryst. 17 (1964) 1202
- /103/ Willis B.T.M.
Some Theoretical Properties of the Double-Crystal
Spectrometer used in Neutron Diffraction
AERE-R 3104 (1959)
- /104/ Willis B.T.M.
Some Theoretical Properties of the Double Crystal
Spectrometer used in Neutron Diffraction
Acta Cryst. 13 (1960) 763
- /105/ Dachs H.
Strahlengang in einem Neutronenspektrometer bei
Einkristalluntersuchungen
Z. Krist. 115 (1961) 80
- /106/ Sabine T.M., Browne J.D.
A Geometrical Consideration in the Design of
Neutron Spectrometers
Acta Cryst. 16 (1963) 435

Auflösungsvermögen von Pulver-Diffraktometern

- /107/ Caglioti G., Paoletti A., Ricci F.P.
Choice of Collimators for a Crystal Spectrometer
for Neutron Diffraction
Nucl. Instr. Methods 3 (1958) 223
- /108/ Popovici M.
Choice of Collimators for Neutron Powder Diffractometry
Nucl. Instr. Methods 36 (1965) 179
- /109/ Sakamoto M., Kunitomi N.
Choice of Collimators for Neutron Diffractometry
Japan J. Appl. Phys. 4 (1965) 011.
- /110/ Hase W., Kleinstück K.
Der Einfluß der Totalreflexion an den Kollimator-
Lamellen auf Neutronen-Pulverdiagramme
Z. Krist. 116 (1961) 48
- /111/ Atoji M.
Neutron Diffraction Studies of CaC_2 , YC_2 , LaC_2 ,
 CeC_2 , TbC_2 , YbC_2 , LuC_2 and UC_2
J. Chem. Phys. 35 (1961) 1950

Auflösungsvermögen von 3-Achsen-Spektrometern

- /112/ Stockmeyer R.
Berechnung der experimentellen Breite von
Phononenlinien beim 3-Achsen-Neutronenspektrometer
Nukleonik 5 (1963) 121
- /113/ Caglioti G., Tocchetti D.
Resolution and Luminosity of a Triple Axis Crystal
Spectrometer in Experiments of Elastic Neutron
Diffraction
Nucl. Instr. Methods 32 (1965) 171

- /114/ van Hove L.
Correlations in Space and Time and Born Approximation
Scattering in Systems of Interacting Particles
Phys. Rev. 95 (1954) 249
- /115/ Hahn H.
Perturbation Theory of Anharmonicity Effects in
Slow Neutron Inelastic Scattering by Crystals
Inelast. Scattering of Neutrons Vol. I, S. 37 (IAEA, 1963)
- /116/ Göttlicher S.
Die Elektronendichteverteilung im Diamanten und im
Silizium bei hohen und tiefen Temperaturen
Dissertation, T.H. Darmstadt (1961)
- /117/ Schwitzgebel K.
Die Elektronendichteverteilung in Silizium bei hohen
Temperaturen
Diplomarbeit, T.H. Darmstadt (1962)
- /118/ Egelstaff P.A.
Thermal Neutron Scattering
Academic Press, (1965)
- /119/ Jex H.
Untersuchungen an Detektoren für Neutronendiffraktometer
IKF-IB 19 (1966)
- /120/ Jex H., Müllner M.
Eine hochempfindliche Neutronen-Kamera
IKF-IB 18 (1965)
- /121/ Müllner M.
Experimentelle Untersuchungen von Strahlenfängern
(1960) unveröffentlicht

- /122/ Stelzer K.
Thermische und epithermische Neutronenflüsse und
Strahlintensitäten am FRF
IKF-1 (1961)
- /123/ Roßberg D.
Untersuchungen von Neutronenspektren im Forschungs-
reaktor Frankfurt (FRF) in Abhängigkeit von Ort und
Temperatur mit einem Neutronen-Flugzeitspektrometer
Dissertation, Universität Frankfurt (1964)
- /124/ König U.
Über den Bau eines Kristallspektrometers für Neutronen
und die Untersuchung der Monochromatorkristalle
Diplomarbeit, Universität Frankfurt IKF-IB 33 (1962)
- /125/ Kohlrausch F.
Praktische Physik II, Tab. 60
Teubner (1960)
- /126/ Eder F. X.
Moderne Meßmethoden der Physik I, S. 423
VEB, Deutscher Verl. der Wiss. (1956)
- /127/ Lonsdale K.
International Tables for X-Ray Crystallography III, S.122
Kynoch Press (1962)
- /128/ Pike E.R.
Counter Diffractometer - the Effect of Vertical
Divergence on the Displacement and Breadth of
Powder Diffraction Lines
J. Sci. Instr. 34 (1957) 355
- /129/ Sturm W.J.
Measurement of Neutron Cross Sections with a
Crystal Spectrometer
Phys. Rev. 71 (1947) 757

- /130/ Holm M.W.
Reflectivity of Calcite for Thermal Neutrons
IDO 16237 (1955)
- /131/ Bacon G.E.
Neutron Diffraction (S. 37)
Clarendon Press (1962)
- /132/ Salter L.S.
The Temperature Variation of the Scattering Properties
of Crystals
Advances in Physics 14 (1965) 1
- /133/ Gray D.E.
American Physics Handbook
McGraw Hill, 2.Ed. (1963) S. 4-66
- /134/ Jex H.
Theorie und Berechnung des Debye-Waller-Koeffizienten
für Ge, Si und Diamant
IKF-IB 20 (1966)
- /135/ Dolling G., Cowley R.A.
The Thermodynamic and Optical Properties of Germanium,
Silicon, Diamond and Gallium Arsenide
Preprint (1966)
- /136/ Blackman M.
The Specific Heat of Solids
Handbuch der Physik VII, 1
Springer (1955)
- /137/ von Laue M.
Röntgenstrahl-Interferenzen
Springer (1960)

Dem Direktor des Instituts für Kernphysik der Universität Frankfurt am Main, Herrn Prof. Dr. E. Schopper, bin ich für die großzügige Arbeitsmöglichkeit und Unterstützung zu Dank verpflichtet.

Herrn Prof. Dr. E. Wölfel danke ich für wertvolle Ratschläge und seine Hilfe bei der Konstruktion des Diffraktometers.

Herrn Diplomphysiker H. Jex habe ich für zahlreiche Diskussionen und für theoretische Ergebnisse zu danken.

Außerdem danke ich allen Mitarbeitern des Instituts für Kernphysik, die zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.

L e b e n s l a u f

Ich wurde am 1. Juli 1928 als Sohn des Lehrers Franz Müllner und seiner Ehefrau Anna, geb. Markel, in Schattau bei Znaim geboren.

In Schattau besuchte ich die Grundschule und in Znaim die Oberschule bis Ende 1943. Nach eineinhalbjährigem Kriegseinsatz und amerikanischer Gefangenschaft trat ich in die Mörike-Oberschule in Ludwigsburg ein und legte 1948 die Reifeprüfung ab.

Im Wintersemester 1949 begann ich an der Technischen Hochschule in Stuttgart mit dem Studium der Physik. Meine Diplomarbeit "Bestimmung des Neutronen-Spektrums der Be(d,n) -Reaktion" fertigte ich unter der Anleitung von Prof. Dr. E. Schopper am Hochspannungslaboratorium Hechingen der Max-Planck-Gesellschaft an. Die Diplomhauptprüfung legte ich am 9. August 1957 in Stuttgart ab.

Seit April 1957 bin ich wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kernphysik der Universität Frankfurt am Main, das von Prof. Dr. E. Schopper geleitet wird.

